

Selbstfokussierung in BaTiO_3 und SBN

Diplomarbeit

Friedrich-Schiller-Universität Jena
Physikalisch-Astronomische Fakultät
Institut für Angewandte Optik

eingereicht von: Anne Rausch
geboren am: 28.12.1981



1. Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. habil. R. Kowarschik

2. Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. habil. A. Tünnermann

Tag der Verleihung des Diploms:

Inhaltsverzeichnis

| | | |
|----------|--------------------------------------------------------------|-----------|
| 1 | Einleitung | 1 |
| 2 | Grundlagen | 3 |
| 2.1 | Kristalle | 3 |
| 2.1.1 | Bariumtitanat | 3 |
| 2.1.2 | Strontiumbariumniobat (SBN) | 7 |
| 2.1.3 | Ladungsträgertransport | 7 |
| 2.2 | Nichtlinearer Brechungsindex | 10 |
| 2.2.1 | Thermische Brechungsindexänderung | 10 |
| 2.2.2 | Piezoeffekt | 11 |
| 2.2.3 | Elektronenpolarisation | 11 |
| 2.2.4 | Besetzungsumverteilung | 11 |
| 2.2.5 | Kerreffekt | 11 |
| 2.2.6 | Photorefraktiver Effekt | 11 |
| 2.3 | Selbstfokussierung | 13 |
| 2.4 | Solitonen | 15 |
| 3 | Kristallparameter | 16 |
| 3.1 | Absorptionskoeffizient und Dotierung | 16 |
| 3.2 | Lage der optischen Achse | 17 |
| 3.3 | Selbstfokussierungseffekt | 21 |
| 4 | Versuchsaufbauten | 23 |
| 4.1 | Aufbau 1 | 23 |
| 4.2 | Aufbau 2 | 24 |
| 5 | Parametervariation der Messungen in BaTiO₃ | 25 |
| 5.1 | Ordentliche Polarisationsrichtung | 25 |
| 5.1.1 | Fokuslage | 25 |
| 5.1.2 | Hintergrundbeleuchtung | 27 |
| 5.1.3 | Löschvorgang | 27 |
| 5.1.4 | Reproduzierbarkeit | 29 |
| 5.1.5 | Laserleistung | 30 |
| 5.2 | Außerordentliche Polarisation | 30 |
| 5.2.1 | Hintergrundbeleuchtung | 32 |
| 5.2.2 | Laserleistung | 32 |
| 5.2.3 | Fokusbereich | 34 |
| 5.2.4 | Wellenlänge | 35 |
| 5.3 | Durchstrahlungsrichtung | 36 |
| 5.4 | Optimale Bedingungen | 37 |

| | | |
|----------|-----------------------------------------------------------------------------|-----------|
| 6 | Untersuchungen in anderen Kristallen | 39 |
| 6.1 | BaTiO ₃ | 39 |
| 6.2 | SBN | 40 |
| 7 | Z-Scan Experiment | 42 |
| 8 | Ursachen der Selbstfokussierung | 45 |
| 8.1 | Thermische Fokussierung | 45 |
| 8.2 | Photorefraktiver Effekt | 47 |
| 8.3 | Simulation | 48 |
| 8.4 | Vergleich der Brechungsindexänderungen | 53 |
| 9 | Zusammenfassung | 54 |
| A | Anhang | 56 |
| A.1 | Kerrmedien | 56 |
| A.2 | Herleitung der Wellengleichung | 56 |
| A.3 | Ableitung der Fokusdistanz bei Selbstfokussierung in Kerrmedien | 57 |
| A.4 | Herleitung der Differentialgleichung für photovoltische Solitonen | 58 |
| A.5 | Korrekturen bei den Transmissionsmessungen | 59 |

1 Einleitung

Es wird geschätzt, dass 60 % aller Bauelemente der Elektroindustrie aus Bariumtitanat gefertigt werden. Damit ist BaTiO_3 einer der bedeutendsten elektrokeramischen Werkstoffe überhaupt. Als Chip in Telefon- und Geldkarten ist es allgegenwärtig, aber auch als Dielektrikum im Kondensator, pyroelektrischer Strahlungsempfänger, Piezoelement, Ultraschallsender und -empfänger, Kaltleiter im Übertemperaturschutz und Schwingquarz in Uhren findet dieses Material breite Anwendung. Es ist ein Basismaterial sowohl für Hochtemperatursupraleiter als auch für Nanostellglieder und Nanosensoren und ist damit - trotz z.T. seit Jahrzehnten etablierter Anwendungsfelder - nach wie vor Gegenstand aktueller Forschungen.

Im November 2004 gelang es einer Gruppe des Forschungszentrums Jülich, mittels einer speziellen Verspannungstechnik, Bariumtitanatschichten mit 1000 mal höherer Spontanpolarisation als die bisher bekannten Bariumtitanatkristalle zu züchten, die somit einzigartige Eigenschaften im Bereich der Halbleiter besitzen [1]. Damit eröffnen sich neue Anwendungsmöglichkeiten sowohl in der Elektronik als auch in der Optik, wobei sich dieses Material besonders an der Schnittstelle beider Technologiezweige anbietet. Derzeit richtet sich dabei besonderes Augenmerk auf die Verwendung von Bariumtitanat in FRAM's, einer Speichergeneration basierend auf Ferroelektrika. Diese werden bisher durch Aufbringen von PZT oder SBT auf einen Wafer hergestellt, wobei vor allem durch die Verwendung von Blei Schwierigkeiten im Herstellungsprozess und beim Recycling entstehen. Bariumtitanat bietet hier eine ungiftige, billige Alternative. Es besteht die begründete Hoffnung, dass aufgrund der Überlegenheit der FRAM's in den Bereichen Datenhaltbarkeit, Schreib- und Lesezeit, geringer Flächenbedarf und vor allem der Nichtflüchtigkeit der Daten, also der Möglichkeit des Datenerhalts ohne Stromversorgung, diese die herkömmlichen RAM's bald verdrängen werden. Langfristig ist Bariumtitanat auch ein vielversprechendes Material zur Fertigung wiederbeschreibbarer 3D-Speicher. (Den ersten kommerziellen Holographiespeicher, der jedoch nicht wiederbeschreibbar ist, will Inphase Ende 2006 unter dem Namen Tapestry auf den Markt bringen.)

Ob nun optischer Speicher oder FRAM, zum Beschreiben und Auslesen des Speichers werden Laser verwendet. Welche Wechselwirkungen zwischen Material und Laserstrahlung auftreten, ist nicht nur in diesem Zusammenhang von großem Interesse. Bekannt ist bisher, dass unter Verwendung eines externen elektrischen Feldes ein starker Selbstfokussierungseffekt in Bariumtitanat erzeugt werden kann [2, 3, 4]. Die verwendeten Feldstärken liegen dabei im Bereich von $2,8 \frac{kV}{cm}$ und die genutzten Intensitäten bei $100 \frac{mW}{cm^2}$. Interessant sind jedoch vor allem Brechungsindexänderungen, die ohne äußeres elektrisches Feld erzeugt werden können, also allein aus Materialeigenschaften resultieren. Diese können z.B. durch Veränderungen der Materialeigenschaften aufgrund von Temperaturänderung, durch das Wirken interner materialeigener Felder oder auch durch den Piezoeffekt hervorgerufen werden. Brechungsindexänderungen, die z.B. aus Materialerwärmung resultieren, also bei hohen Laserintensitäten auftreten, wurden sowohl in Bariumtitanat als auch in anderen Kristallen wie z.B. SBN beobachtet [5, 6, 7]. Bei kleinen Intensitäten auftretende, durch interne remanente Felder verursachte Brechungsindexänderungen konnten bisher nur in Lithiumniobatkristallen beobachtet werden [8, 9, 10, 11].

Im Rahmen dieser Arbeit soll untersucht werden, ob ein Selbstfokussierungseffekt in Bariumtitanat auch ohne äußeres elektrisches Feld beobachtet werden kann. Falls ein Effekt nachgewiesen werden kann, soll untersucht werden, unter welchen Bedingungen der Effekt besonders stark ist und unter welchen er vermieden werden kann. Die Arbeit wurde teilfinanziert aus Mitteln der DFG im Rahmen der Forschergruppe „Nichtlineare raum-zeitliche Dynamik in dissipativen und diskreten optischen Systemen - räumlich lokalisierte Strukturen und Inhomogenitäten“.

2 Grundlagen

2.1 Kristalle

2.1.1 Bariumtitanat

Bariumtitanat ist ein Ferroelektrikum mit Perowskitstruktur (siehe Abbildung 2.1a). Seine Curie-Temperatur liegt bei 120°C , was auch die Temperatur des ersten Phasenübergangs ist. Oberhalb von 120°C ist seine Elementarzelle kubisch, unterhalb tetragonal, wobei die Verzerrung jedoch gering ist. Die c-Achse ist in der tetragonalen Phase nur um 1 % länger als die a-Achse. Ein weiterer Phasenübergang in eine rhombische Elementarzelle tritt bei 9°C (Abkühlen) bzw. 18°C (Erwärmen) auf, und bei -80°C findet der dritte Phasenübergang in eine trigonale Einheitszelle statt.

In der tetragonalen Phase sind die Ionen nicht symmetrisch angeordnet (siehe Abbildung 2.1b), sondern das Titanion ist gegenüber dem Bariumquader nach oben verschoben, und der Sauerstoff-Oktaeder ist verschoben und leicht gestaucht (siehe Abbildung 2.1c). Deshalb hat Bariumtitanat in dieser Phase eine Rotationsachse aber keine Spiegelebene senkrecht dazu. Die atomare Anordnung am einen Ende der Rotationsachse unterscheidet sich also von der Anordnung am anderen Ende, was zu einer Spontanpolarisation der Elementarzelle führt. Bariumtitanat ist, so wie alle Kristalle der Raumgruppe $4mm$, ein polarer Kristall.

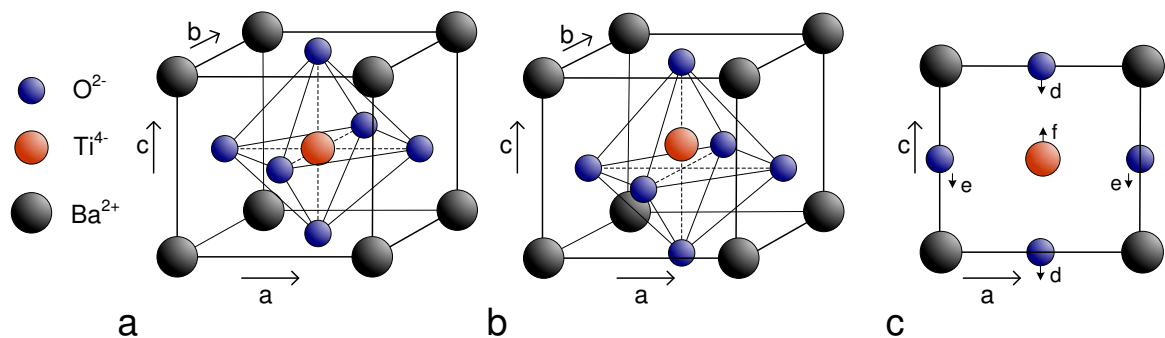


Abbildung 2.1: a) Bariumtitanat in der tetragonalen Phase ohne Berücksichtigung der asymmetrischen Anordnung der Ionen

kovalente Radien: $\text{Ba} = 0,198 \text{ nm}$, $\text{Ti} = 0,132 \text{ nm}$, $\text{O} = 0,073 \text{ nm}$

Gitterkonstanten: $a = b = 0,3992 \text{ nm}$, $c = 0,4036 \text{ nm}$; Dichte: $\rho = 6,02 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$

b) Bariumtitanat in der tetragonalen Phase mit Berücksichtigung der asymmetrischen Anordnung der Ionen

c) Projektion auf die ac -Ebene bei 21°C : $d = 0,009 \text{ nm}$, $e = 0,005 \text{ nm}$, $f = 0,005 \text{ nm}$

Bedingt durch die relativ leichte Verschiebbarkeit des Titan- und der Sauerstoffionen gegenüber den Bariumionen zeigt Bariumtitanat sowohl starke elektrooptische, pyroelektrische als auch piezoelektrische Effekte.

Piezoeffekt

Wird Druck auf einen piezoelektrischen Kristall ausgeübt, sammeln sich Ladungsträger auf der Kristalloberfläche, was zu einer Aufladung der betroffenen Kristallflächen führt (direkter Piezoeffekt). Umgekehrt verformen sich derartige Kristalle beim Anlegen eines elektrischen Feldes (reziproker Piezoeffekt). Diese Längenänderung, die auf eine Deformation der Gitterstruktur und damit auf eine Änderung der Ionenverteilung im Kristall zurückzuführen ist, hängt linear vom angelegten Feld \vec{E} ab. Die Proportionalitätskonstante wird als piezoelektrischer Ladungstensor \hat{d} bezeichnet. Wie bereits in der Einleitung erwähnt, ist Bariumtitanat einer der meist genutzten Stoffe für Piezoelemente, was aus den verhältnismäßig hohen Werten der Komponenten seines Piezotensors resultiert.

Pyroelektrischer Effekt

Ändert man die Temperatur eines pyroelektrischen Kristalls, ändert sich die Ladungsträgerdichte auf den Kristalloberflächen, die senkrecht zur Polarisationsachse des Kristalls stehen. Dieser Effekt wird mittels eines Vektors beschrieben, der durch $\vec{p}_m = \partial \vec{P}_s / \partial T$ definiert ist. \vec{P}_s ist der Vektor der Spontanpolarisation und T die Temperatur. Der pyroelektrische Koeffizient von Bariumtitanat beträgt $-20 \frac{nC}{cm^2 K}$ [12]. Wie für die meisten Kristalle ist er negativ, was bedeutet, dass die spontane Polarisation bei Temperaturerhöhung sinkt.

Elektrooptischer Effekt

Dieser Effekt basiert auf der Abhängigkeit der Komponenten des dielektrischen Permeabilitätstensors $\hat{\epsilon}$ und damit des Brechungsindex $n_{ij} = \sqrt{\epsilon_{ij}}$ vom wirksamen elektrischen Feld. Dieses Feld kann extern angelegt werden oder durch Ausnutzung spezieller Materialeigenschaften (z.B. Piezoeffekt) im Material hervorgerufen werden. Dabei unterscheidet man zwischen dem Pockelseffekt bei dem ein linearer Zusammenhang zwischen $\hat{\epsilon}$ und dem elektrischen Feld \vec{E} besteht, und dem Kerreffekt, bei dem $\hat{\epsilon}$ eine Funktion von $|\vec{E}|^2$ ist. In anisotropen Materialien wie Bariumtitanat kann der Brechungsindex nicht mehr durch einen Skalar beschrieben werden, sondern ist durch ein Indexellipsoid gegeben. Wirkt ein elektrisches Feld auf diese Indexverteilung, ändert sich sowohl die Größe als auch die Orientierung des Ellipsoids. Dies wird als elektrooptischer Effekt bezeichnet.

Wenn also ein elektrisches Feld auf ein elektrooptisches Material wirkt, ändert sich dessen Impermeabilitätstensor $\hat{\eta} = \hat{\epsilon}^{-1}$ gemäß [13]

$$\Delta(\eta)_{ij} = \frac{1}{n_{ij}^2(\vec{E})} - \frac{1}{n_{ij}^2(\vec{E}=0)} = \sum_{k=1}^3 r_{ijk} E_k + \sum_{k=1}^3 \sum_{l=1}^3 s_{ijkl} E_k E_l . \quad (2.1)$$

Nur in nicht zentrosymmetrischen Materialien wie BaTiO₃ sind die Komponenten des linearen elektrooptischen Tensors r_{ijk} ungleich Null, also nur in diesen Materialien ist der Pockelseffekt beobachtbar. In zentrosymmetrischen Materialien sind nur die Komponenten des quadratischen elektrooptischen Tensors s_{ijkl} wirksam. Durch die Permutationssymmetrien in den elektrooptischen Tensoren kann man eine Kurzschreibweise einführen, die für den linearen Tensor \hat{r} lautet

$$\begin{array}{lll} r_{1k} = r_{11k} & r_{2k} = r_{22k} & r_{3k} = r_{33k} \\ r_{4k} = r_{23k} = r_{32k} & r_{5k} = r_{13k} = r_{31k} & r_{6k} = r_{12k} = r_{21k} . \end{array}$$

Der lineare elektrooptische Tensor für Bariumtitanat der Raumgruppe 4mm lautet damit

$$\hat{r} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & r_{13} \\ 0 & 0 & r_{13} \\ 0 & 0 & r_{33} \\ 0 & r_{51} & 0 \\ r_{51} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (2.2)$$

Die Kurzschreibweise für den quadratischen elektrooptischen Tensor folgt der Regel

$$s_{ijkl} = s_{jilk} \rightarrow s_{mn}$$

$$\begin{array}{lll} 11 \rightarrow 1 & 22 \rightarrow 2 & 33 \rightarrow 3 \\ 23 = 32 \rightarrow 4 & 13 = 31 \rightarrow 5 & 12 = 21 \rightarrow 6. \end{array}$$

Damit lautet der Tensor für BaTiO₃ in Kurzschreibweise

$$\hat{s} = \begin{pmatrix} s_{11} & s_{12} & s_{13} & 0 & 0 & 0 \\ s_{12} & s_{11} & s_{13} & 0 & 0 & 0 \\ s_{31} & s_{31} & s_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & s_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & s_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & s_{66} \end{pmatrix}. \quad (2.3)$$

Setzt man diese Tensoren in Formel 2.1 ein, ergibt sich z.B. für

$$\begin{aligned} \Delta\eta_{11} &= r_{111}E_1 + r_{112}E_2 + r_{113}E_3 + s_{1111}E_1E_1 + s_{1112}E_1E_2 \\ &\quad + s_{1113}E_1E_3 + s_{1121}E_2E_1 + s_{1122}E_2E_2 + s_{1123}E_2E_3 \\ &\quad + s_{1131}E_3E_1 + s_{1132}E_3E_2 + s_{1133}E_3E_3 \\ &= r_{13}E_3 + s_{11}E_1E_1 + s_{12}E_2E_2 + s_{13}E_3E_3. \end{aligned}$$

Für die übrigen Komponenten folgt

$$\begin{aligned} \Delta\eta_{12} &= 2s_{66}E_1E_2 \\ \Delta\eta_{13} &= r_{51}E_1 + 2s_{44}E_1E_3 \\ \Delta\eta_{21} &= 2s_{66}E_1E_2 \\ \Delta\eta_{22} &= r_{13}E_3 + s_{12}E_1E_1 + s_{11}E_2E_2 + s_{13}E_3E_3 \\ \Delta\eta_{23} &= r_{51}E_2 + 2s_{44}E_2E_3 \\ \Delta\eta_{31} &= r_{51}E_1 + 2s_{44}E_1E_3 \\ \Delta\eta_{32} &= r_{51}E_2 + 2s_{44}E_2E_3 \\ \Delta\eta_{33} &= r_{33}E_3 + s_{31}E_1E_1 + s_{31}E_2E_2 + s_{33}E_3E_3. \end{aligned}$$

Im Falle eines einachsigen Kristalls wie Bariumtitanat ist der dielektrische Verschiebungsfeldvektor der ordentlich polarisierten Welle durch

$$\vec{d}_o = \frac{\vec{k} \times \vec{c}}{|\vec{k} \times \vec{c}|} \quad (2.4)$$

gegeben [14], wobei die c-Achse in z-Richtung zeigt, und der dielektrische Verschiebungsfeldvektor der außerordentlich polarisierten Welle durch

$$\vec{d}_e = \frac{\vec{d}_o \times \vec{k}}{|\vec{d}_o \times \vec{k}|} . \quad (2.5)$$

Dabei ist \vec{k} der Wellenvektor, und \vec{c} ist der Einheitsvektor parallel zur c-Achse. Da sich der Eigenwert des Brechungsindex einfach aus

$$\langle \eta \rangle = \left\langle \vec{d} | \eta | \vec{d} \right\rangle = \frac{1}{n^2} \quad (2.6)$$

ergibt [14] folgt für die Änderung des Brechungsindex von BaTiO₃ durch ein elektrisches Feld

$$\Delta n = -\frac{1}{2} n_0^3 \langle \Delta \eta \rangle , \quad (2.7)$$

wobei die Näherung

$$\Delta n = -\frac{1}{2} n_0^3 \Delta \left(\frac{1}{n^2} \right) \quad (2.8)$$

verwendet wurde.

Ladungsträger

Ein ideal reiner BaTiO₃-Kristall ohne Gitterfehler wäre ein Isolator denn die Energielücke zwischen Valenz- und Leitungsband beträgt 3,3 eV [13]. Durch gewollte oder ungewollte Dotierungen und Baufehler der Gitterstruktur entstehen Energieniveaus oberhalb der Valenzbandkante (Löcherleitung) und unterhalb der Leitungsbandkante (Elektronenleitung), mittels derer frei bewegliche Ladungsträger erzeugt werden können.

Von den 3 Elementen, aus denen Bariumtitanat besteht, ist Sauerstoff das reaktivste, was dazu führt, dass dieses Element die höchste Wahrscheinlichkeit besitzt, Baufehler im Gitter zu erzeugen. Da das Sauerstoffion im Gitter die Ladung $-2e$ hat, besitzt eine Sauerstoffgitterlücke die Ladung $+2e$ und kann somit zwei Elektronen aufnehmen. Dies führt zu Donatorniveaus in der Bandlücke, welche schon bei Raumtemperatur thermisch ionisiert und deshalb nur schwach besetzt sind. Aber auch Ba-Gitterlücken können leicht bei der Herstellung eines Bariumtitanat Kristalls entstehen [15]. Diese erzeugen tiefe Akzeptorniveaus in der Bandlücke. Die Konzentration derartiger O- und Ba- Gitterlücken liegt im Bereich von 100 ppm. Es gibt 3 wichtige Gruppen von Fremdatomen in Bariumtitanat: Calcium und Strontium, Aluminium und Silizium und die Übergangsmetalle [15]. Calcium und Strontium gehören zur selben Hauptgruppe des Periodensystems wie Barium, und treten in der Natur daher auch fast immer zusammen mit ihm auf. Sie sind auch schwer von Barium zu trennen. Da beide Stoffe aber isovalent mit Barium sind und somit seinen Gitterplatz einnehmen können, erzeugen sie keine Niveaus in der Bandlücke. Verunreinigungen mit Aluminium und Silizium werden durch die Heizelemente und Wände der Schmelzöfen erzeugt. Es wird aber angenommen, dass diese nicht zu den hier betrachteten Ladungstransportprozessen beitragen (siehe Kapitel 2.1.3, Seite 7), da sie jeweils nur einen stabilen Ionisationszustand besitzen (Al^{3+} und Si^{4+}). Verunreinigungen durch Übergangsmetalle sind allgegenwärtig in vielen Kristallen, die Sauerstoff enthalten. Zum einen wegen ihres häufigen natürlichen Vorkommens, zum anderen wegen ihrer chemischen Ähnlichkeit zu den Grundsubstanzen (hier z.B. Ti) und

der hohen Wahrscheinlichkeit der Verunreinigung der Ausgangsmaterialien bzw. der während des Herstellungsprozesses verwendeten Geräte. Es finden sich in Bariumtitanat vor allem Fe, Cr, Co, Ni, Cu und sie alle in Konzentrationen bis ca. 50 ppm. Aufgrund der geringen Bindungsenergien ihrer Elektronen können alle diese Elemente in Ionisationszuständen zwischen $+1e$ und $+4e$ auftreten. Ausführliche Untersuchungen wurden vor allem zu Eisenstörstellen durchgeführt [15]. Diese ergaben, dass es im Gitter die Stelle von Ti einnimmt, da es einen etwa gleich großen Radius besitzt, und entscheidend zum Ladungstransport beiträgt. Des weiteren gibt es zahlreiche Untersuchungen zur gezielten Dotierung von Bariumtitanat. Zum Beispiel konnte der Absorptionskoeffizient des Materials im Infraroten durch das Dotieren mit Rhodium erhöht werden [16, 17, 18].

2.1.2 Strontiumbariumniobat (SBN)

SBN ist wie Bariumtitanat ein Ferroelektrikum, das jedoch Wolfram-Bronze-Struktur besitzt. Es zeigt ebenfalls starke pyroelektrische und piezoelektrische Effekte. Die obigen Überlegungen zum elektrooptischen Effekt gelten analog auch für diesen einachsigen Kristall, da er derselben Raumgruppe angehört. Allerdings können die entsprechenden Konstanten, abhängig vom Verhältnis von Sr/Ba, stark variieren. Die Curietemperatur z.B. kann je nach Zusammensetzung zwischen 60°C und 250°C liegen [12]. Dementsprechend lässt sich auch nur eine allgemeine chemische Formel angeben: $\text{Sr}_{1-x}\text{Ba}_x\text{Nb}_2\text{O}_6$ mit $0,2 < x < 0,8$.

2.1.3 Ladungsträgertransport

Das einfachste Ladungstransportmodell geht von einer Störstellenart in zwei Valenzzuständen aus zwischen denen die Umladungsprozesse stattfinden. In diesem Modell ist die Absorption keine Funktion der Lichtintensität. Die Kristalle zeigen aber lichtinduzierte Absorption [19, 20], was erst durch das Zwei-Zentren-Modell erklärt werden kann.

Dieses Modell geht von zwei Störstellenarten in jeweils zwei Valenzzuständen aus. Die Umladungsprozesse können sowohl im Bandtransportmodell als auch im Hopping-Modell [19, 20] beschrieben werden, welche hinsichtlich der Transportprozesse ähnliche Ergebnisse liefern. Hier soll im Folgenden das Bandtransportmodell verwendet werden. Bariumtitanat zeigt bei Wellenlängen größer als 500 nm fast ausschließlich Löcherleitung, was eine erhebliche Vereinfachung der Modellbeschreibung ermöglicht. Des weiteren kann davon ausgegangen werden, dass Elektronen aufgrund der großen Energielücke nicht direkt vom Valenz- ins Leitungsband angeregt werden können. Abbildung 2.2 (Seite 8) zeigt schematisch die energetische Lage der Störstellen C_1 und C_2 in den Valenzzuständen C_i^0 (Löcherfallen) und C_i^+ (Löcherquellen) zwischen Valenz- und Leitungsband. Es seien C_1 eine tiefe Störstelle und C_2 eine flache Störstelle, wobei tief und flach die energetische Lage bezüglich der Valenzbandkante bezeichnen. Hierbei ist anzumerken, dass sich diese Bezeichnung auf die unterschiedlichen Löchergenerationsraten der beiden Störstellenarten bezieht. (Die Generationsrate der flachen Störstelle ist deutlich größer.) Im Sinne der Halbleiterphysik gilt auch die hier als flach bezeichnete Störstelle, aufgrund ihrer thermischen Aktivierungsenergie von einigen 100 meV immer noch als tief.

Durch die hohe thermische Generationsrate für Löcher an C_2 existieren im unbeleuchteten Zustand praktisch nur C_2^0 und analog C_1^+ Störstellen. Wird der Kristall nun in einem bestimmten Gebiet beleuchtet, werden Löcher an C_1^+ Störstellen generiert. Diese Löcher wandern im Valenzband und werden im unbeleuchteten Bereich an C_1^0 oder C_2^0 Zentren eingefangen. Aus den dadurch erzeugten C_2^+ Störstellen können, aufgrund ihrer hohen thermischen Generati-

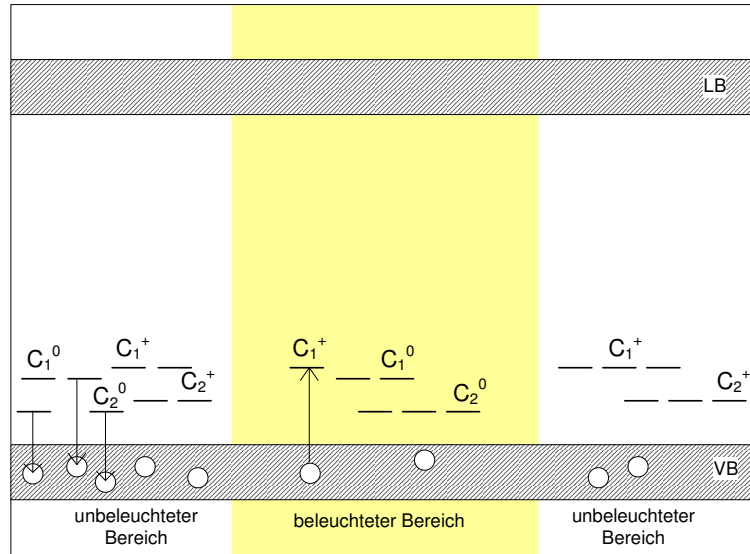


Abbildung 2.2: Ladungstransport im Bändermodell: Die Pfeile kennzeichnen die Anregung eines Elektrons bzw. die Rekombination eines Lochs. Durch die, im beleuchteten Bereich (gelb) zugeführte Energie, werden Elektronen vom Valenzband VB in die Störstellen C_1^+ angeregt. Die dadurch entstandenen Löcher wandern in die unbeleuchteten Bereiche, und rekombinieren dort mit C_2^0 bzw. C_1^0 Störstellen.

onsrate, wiederum sehr leicht Löcher erzeugt werden, so dass die Konzentration N_2^+ an C_2^+ Zentren klein bleibt. Die Absorption ist bei kleinen Intensitäten deshalb noch konstant. Mit steigender Lichtintensität werden mehr und mehr Löcher an C_1^+ Zentren erzeugt, so dass auch die Konzentration an C_2^+ Zentren ansteigt. Es findet also nicht nur eine Abwanderung von beleuchteten in unbeleuchtete Bereiche statt, sondern auch eine Umverteilung der Elektronen von den flachen in die tiefen Zentren (auch im beleuchteten Bereich). Bei unterschiedlichen Wirkungsquerschnitten der Photonenabsorption tiefer und flacher Zentren ist dieses mit einer Änderung der Absorption verbunden

$$\alpha(I_p) = \alpha_{li}(I_p) + \alpha_0 . \quad (2.9)$$

Hierbei bezeichnen α_0 die Grundabsorption, $\alpha_{li}(I_p)$ die lichtinduzierte Absorptionsänderung und $\alpha(I_p)$ die Absorption des Kristalls bei Beleuchtung mit der Pumpintensität I_p .

Ein weiteres Modell, dass ebenfalls in der Lage ist die lichtinduzierte Absorption zu erklären aber aufgrund seiner Ähnlichkeit zum Zwei-Zentren-Modell nur kurz erwähnt werden soll, ist das Drei-Valenzen-Modell. Die Beschreibung des Ladungstransports erfolgt analog, nur dass hier von einer Störstellenart in drei Valenzzuständen ausgegangen wird [19].

Das Wandern der Löcher im Valenzband kann durch drei unterschiedliche Mechanismen verursacht werden: Diffusion, Drift und den photovoltaischen Effekt.

Diffusion

In dem beleuchteten Bereich des Kristalls steigt die Konzentration von Löchern stark an, was dazu führt, dass diese in die unbeleuchteten Bereiche diffundieren. Dadurch wird ein Raumladungsfeld erzeugt (siehe Abbildung 2.3). Wird nun weiter Laserlicht eingestrahlt, steigt

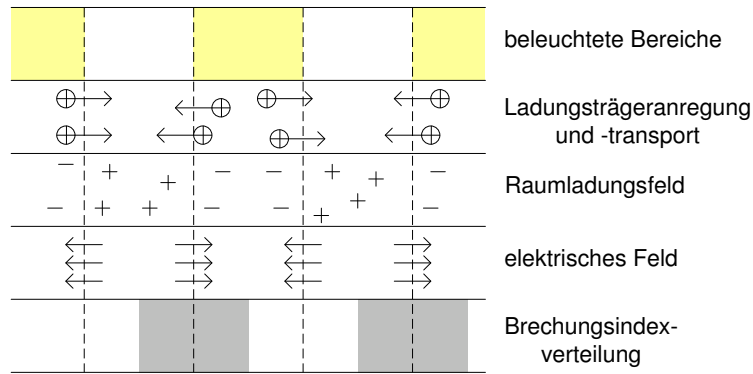


Abbildung 2.3: Ladungstransport durch Diffusion: Die, in den beleuchteten Bereichen (gelb) erzeugten, Ladungsträger, wandern in die unbeleuchteten Bereiche (weiß). Durch diese Ladungsträgertrennung wird ein elektrisches Feld erzeugt. Dieses ist durch den elektrooptischen Effekt mit einer Brechungsindexmodulation verbunden.

die Feldstärke so lange an, bis sie den Ladungsträgertransport vollständig verhindert. Dann befinden sich das erzeugte Raumladungsfeld E_{sc} und das so genannte effektive Diffusionsfeld E_D im Gleichgewicht und trotz weiterer Beleuchtung kann kein Ladungsträgertransport mehr stattfinden. Sei T die Temperatur, $N(x)$ die Löcherkonzentration und k_B die Boltzmannkonstante dann gilt

$$E_D(x) = \frac{k_B T}{e} \frac{1}{N(x)} \frac{dN(x)}{dx} .$$

Drift

Oft wird aber ein äußeres elektrisches Feld verwendet, um Ladungsträgertrennung zu erzielen (siehe Abbildung 2.4).

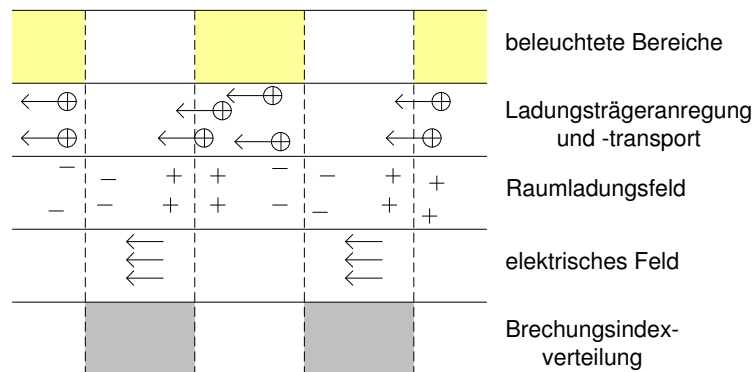


Abbildung 2.4: Ladungstransport durch Drift: Die, in den beleuchteten Bereichen (gelb) erzeugten, Ladungsträger, wandern gerichtet in die unbeleuchteten Bereiche (weiß). Durch diese Ladungsträgertrennung wird ein elektrisches Feld erzeugt, das dem äußeren elektrischen Feld entgegenwirkt. Dieses ist durch den elektrooptischen Effekt mit einer Brechungsindexmodulation verbunden.

Im beleuchteten Bereich entstehen wieder Ladungsträger, die durch das angelegte elektrische Feld gerichtet abwandern. In den unbeleuchteten Bereichen können sie dann rekombinieren. Dadurch baut sich ein inneres Raumladungsfeld auf, das dem äußeren Feld entgegenwirkt, wie in Abbildung 2.4 dargestellt. Befinden sich das aufgebaute Raumladungsfeld und das angelegte E-Feld im Gleichgewicht kann kein weiterer Ladungstransport mehr stattfinden.

Photovoltaischer/photogalvanischer Effekt

Die freien Ladungsträger in Materialien wie Bariumtitanat und SBN besitzen eine Vorzugsrichtung der Bewegung in Richtung der optischen Achse, also in Richtung des Vektors der Spontanpolarisation des Materials. Der oben erklärte, gerichtete Ladungstransport durch Drift kann so auch ohne äußeres Feld stattfinden [21, 22, 15]. Des Weiteren treten anisotroper Ladungsträgereinfang und eine Verschiebung der Ionen bei Anregung auf. Da alle diese asymmetrischen Effekte die gleiche Richtung besitzen, tritt eine effektive photovoltaische Stromdichte auf, die genähert werden kann durch

$$j_i^{ph} = \beta_{ijk} E_j E_k^* = -\kappa \alpha I . \quad (2.10)$$

Dabei sind E_j und E_k die Komponenten der inneren elektrischen Feldstärke und β_{ijk} die Komponenten des photovoltaischen Tensors, I die Intensität, α der Absorptionskoeffizient für in die entsprechende Richtung polarisiertes Licht und κ eine Materialkonstante (Glasskoeffizient).

2.2 Nichtlinearer Brechungsindex

Der nichtlineare Brechungsindex kann allgemein definiert werden, als die Eigenschaft des Materials unter dem Einfluss einer optischen Welle seinen Brechungsindex bzw. die räumliche Verteilung des Wertes des Brechungsindex zu ändern. Die wesentlichsten Effekte die in Festkörpern wie BaTiO₃ und SBN diese Änderung verursachen können, sollen im Folgenden erläutert werden.

2.2.1 Thermische Brechungsindexänderung

Jedes Medium, das nennenswerte Absorption besitzt, zeigt diesen Effekt. Durch den einfallenden Laserstrahl wird das Material erwärmt und dehnt sich aus, wodurch sich die Dichte des Mediums verändert. Da der Brechungsindex proportional zur Dichte ist, ist die mit Erwärmung verbundene Brechungsindexänderung meist negativ. In Halbleitern kann sich die Absorptionsbandkante bei Temperaturerhöhung zu größeren Wellenlängen hin verschieben (Franz-Keldysh-Effekt), was den Absorptionskoeffizienten und damit den Brechungsindex erhöht. Die Änderung des Brechungsindex $n = n_0 + T \frac{dn}{dT}$ setzt sich also bei Vernachlässigung der thermischen Diffusion aus zwei Teilen zusammen [23]

$$\frac{dn}{dT} = \left(\frac{\partial n}{\partial T} \right)_\rho + \left(\frac{\partial n}{\partial \rho} \right)_T \frac{d\rho}{dT} .$$

Dabei ist ρ die Dichte und T die absolute Temperatur.

2.2.2 Piezoeffekt

In einem inhomogenen Feld erfahren Dipole eine Verschiebungskraft, die proportional zum Gradienten des Feldes ist. Unter dem Einfluss eines Gaußstrahls werden sie sich also in Richtung der höheren Intensität bewegen. Dies verursacht einen Anstieg der Dichte und damit des Brechungsindex im Strahlzentrum. Die sich ergebende Brechungsindexänderung kann durch

$$\Delta n = \frac{[(n_0^2 + 2)(n_0^2 - 1)]^2}{36\nu_a^2 \rho n_0^2 c} I \quad (2.11)$$

abgeschätzt werden [23, 24], wobei ν_a die Schallgeschwindigkeit im Medium, ρ die Dichte und c die Lichtgeschwindigkeit ist. Die Antwortzeiten für diesen Effekt liegen typischerweise im Bereich von 10^{-9} s.

2.2.3 Elektronenpolarisation

Das optische Feld kann die Elektronenwolke eines Atoms oder Moleküls so stark verzerren, dass eine Änderung des Brechungsindex auftritt. Dieser Effekt kann in nennenswerter Größe jedoch vor allem in stark polarisierbaren, großen, organischen Molekülen und einigen Polymeren beobachtet werden. Da er in Bariumtitanat und SBN nicht in nennenswerter Größe auftritt, soll er hier nicht näher erläutert werden.

2.2.4 Besetzungsumverteilung

In Halbleitern ist es unter Umständen möglich, Elektronen direkt vom Valenz- ins Leitungsband anzuregen. Oft ist das Leitungsband durch thermische Anregung auch schon bei Raumtemperatur schwach besetzt. Des Weiteren können auch Elektronen von oder in Dotierungsniveaus angeregt werden. Durch die Änderung der Elektronen- und Löcherdichte N kommt es zur Änderung der Plasmafrequenz. Die resultierende Brechungsindexänderung, bei Bestrahlung mit einem cw-Laser, kann mittels der Kramers-Kronig-Relation berechnet werden, die diese mit der Änderung der Absorption $\Delta\alpha(\omega, I)$ durch die Ladungsträgerdichteänderung verknüpft [23]

$$\Delta n(\omega, I) = \frac{c}{\pi} \times P.V. \int_0^\infty \frac{\Delta\alpha(\omega', I)}{(\omega')^2 - \omega^2} d\omega'$$

mit $P.V. \int_A^B f(x)dx = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \left[\int_A^{a-\epsilon} f(x)dx + \int_{a+\epsilon}^B f(x)dx \right]$.

Sei a eine Singularität der Funktion $f(x)$ auf der realen Achse.

2.2.5 Kerreffekt

Wie bereits in Kapitel 2.1.1 gezeigt, ändert sich der Brechungsindex durch den quadratischen elektrooptischen Effekt. Vor allem bei zentrosymmetrischen Materialien, bei denen die linearen elektrooptischen Tensorkomponenten null sind, ist dieser Effekt für die Brechungsindexänderung verantwortlich. Bis auf die quadratische Feldabhängigkeit und den damit verbundenen Tensor sind die Überlegungen analog zum photorefraktiven Effekt.

2.2.6 Photorefraktiver Effekt

Wenn Bariumtitanat oder SBN beleuchtet werden, können freie Ladungsträger durch Anregung von Elektronen in Störstellenniveaus erzeugt werden (siehe Kapitel 2.1.1). Die entstan-

denen Löcher können dann, durch die in Abschnitt 2.1.3 beschriebenen Ladungstransportprozesse, im Valenzband wandern. Erfolgt die Beleuchtung inhomogen, so dass es im Kristall beleuchtete und unbeleuchtete Regionen gibt, wandern die Ladungsträger in die unbeleuchteten Bereiche (oder auch von den stärker in die schwächer beleuchteten Bereiche), so dass sich durch die Ladungsträgertrennung ein Raumladungsfeld aufbaut (siehe Abbildung 2.5).

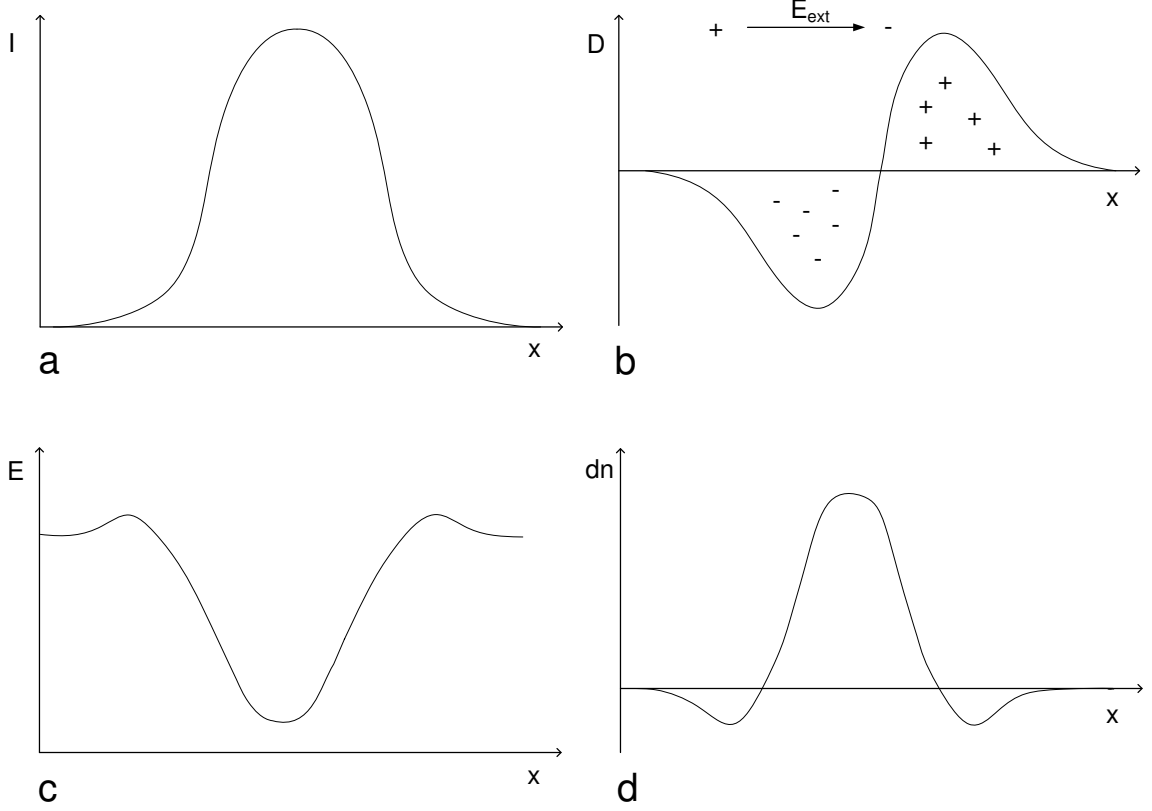


Abbildung 2.5: a) Fällt eine *symmetrische Lichtverteilung* auf einen photorefraktiven Kristall, b) entsteht eine *asymmetrische Ladungsträgerverteilung*. c) Diese ist über das Gaußsche Gesetz mit einem *Raumladungsfeld* verbunden, d) das mittels des Pockelseffekts eine *symmetrische Brechungsindexverteilung* erzeugt.

Dieses Feld ist durch den Pockelseffekt mit einer Änderung des Brechungsindex verbunden [25, 26, 27, 28]. Die allgemeinen Bilanzgleichungen (Kukhtarevgleichungen) für Löcherdichte und Stromdichte und die Poissongleichung im stationären Fall für alleinige Löcherleitung lauten [15]

$$(sI + \beta) N^+ - \gamma n N = 0 \quad (2.12)$$

$$e\mu n E - k_B T \mu \nabla n + \kappa s N^+ I = 0 \quad (2.13)$$

$$-\left(\frac{e}{\epsilon\epsilon_0}\right) (N_A - N^+ - n) = \nabla \cdot E. \quad (2.14)$$

Dabei sei N^+ die Akzeptorzahldichte, N die Donatorzahldichte, N_A die Anzahldichte der negativ geladenen Ionen, welche die N^+ -Ladung im Dunkeln kompensieren, k_B die Boltzmannkonstante, e die Elementarladung, n die Löcherzahldichte, s der Photoionisationswir-

kungsquerschnitt, β die Dunkelgenerationsrate, γ der Rekombinationsratenkoeffizient, μ die Löcherbeweglichkeit und κ die photovoltaische Konstante (Glasskonstante).

2.3 Selbstfokussierung

Wenn ein Lichtstrahl mit inhomogener Intensitätsverteilung auf ein Medium mit nichtlinearem Brechungsindex fällt, kommt es zur Selbstfokussierung (Selbstdefokussierung), d.h. zur Verringerung (Vergrößerung) des Durchmessers des Strahls. Da der nichtlineare Brechungsindex eine Funktion der Temperatur und des wirkenden Feldes ist (siehe Kapitel 2.2, Seite 10) wird ein Brechungsindexgradient im Medium induziert, der den Strahl (oder Strahlteile) fokussiert (defokussiert).

Im Allgemeinen ist der einfallende Strahl ein Gaußstrahl, und das Medium besitzt eine positive Nichtlinearität. In diesem Fall wirkt das nichtlineare Material als Sammellinse. Die Phasengeschwindigkeit der Welle ist im Strahlzentrum aufgrund des höheren Brechungsindex (stärkere Intensitätsänderung bzw. höhere Intensität) geringer, wodurch es zu einer Krümmung der Phasenfläche kommt (siehe Abbildung 2.6).

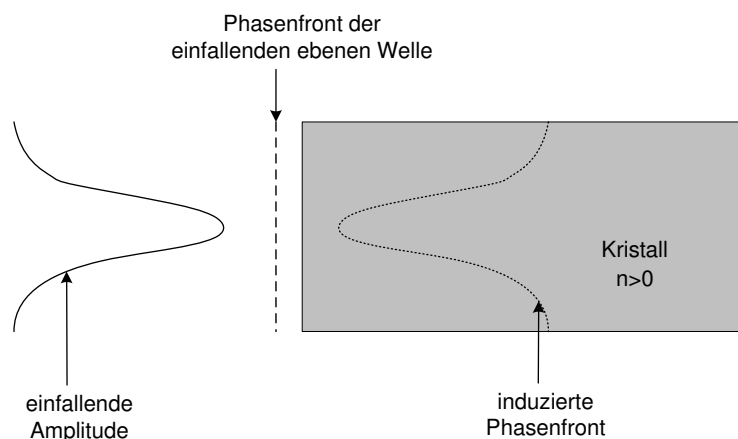


Abbildung 2.6: Phasenfronten bei der Selbstfokussierung einer Intensitätsverteilung in einem Medium mit positiver Nichtlinearität

Da der Wellenvektor \vec{k} immer senkrecht zur Phasenfläche steht, bewirkt dies schließlich eine Einschnürung des Strahls. Man unterscheidet dabei zwischen dünnen und dicken Medien, wobei man von dicken Medien spricht, wenn der Fokus noch innerhalb des Mediums liegen kann.

Im letzteren Fall kann es oberhalb einer kritischen Leistung P_{kr} zu katastrophaler Selbstfokussierung kommen. Diese kritische Leistung kann man abschätzen, indem man das Verhältnis von Beugung und Selbstfokussierung betrachtet. Für den Winkel, um den ein Strahl durch die Beugung an einer kreisförmigen Blende aufgeweitet wird (siehe Abbildung 2.7a, Seite 14), gilt

$$\theta_B = \frac{1,22\lambda}{n_0 d} .$$

Sei hier der Radius bei $\frac{1}{2}I_{max}$ des Strahls und λ die Wellenlänge. Unter der Annahme, dass sich der Brechungsindex zwischen den Bereichen innerhalb und außerhalb des Halbwertsradius sprunghaft um $\Delta n = \frac{1}{2}n_2 E^2$ (siehe Kapitel A.1, Seite 56) ändert, ergibt sich die Bedingung

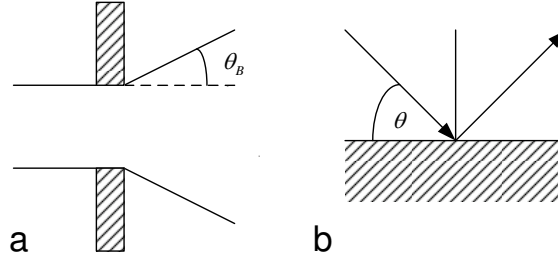


Abbildung 2.7: a) Beugungswinkel θ_B b) Winkel der Totalreflexion θ

zur Selbstfokussierung aus der Bedingung zur Totalreflexion (siehe Abbildung 2.7b) an der „Grenze“ des Strahls

$$\sin \theta_t = \cos \theta \approx 1 - \frac{\theta^2}{2} = \frac{n_0}{n_0 + \Delta n} .$$

Mit $\frac{n_0}{n_0 + \Delta n} = \frac{1}{1 + \frac{\Delta n}{n_0}} \cong 1 - \frac{\Delta n}{n_0}$ folgt $\theta^2 = \frac{2\Delta n}{n_0}$ und somit

$$\theta \geq \theta_B \Rightarrow d^2 \geq \frac{(1,22\lambda)^2}{2n_0\Delta n} .$$

Aus der eingestrahnten Leistung folgt somit für die kritische Leistung der Selbstfokussierung

$$P = \frac{n_0 \epsilon_0 c}{2} |E|^2 \frac{\pi d^2}{4} \geq \frac{\epsilon_0 c \pi}{16} \frac{1,22^2 \lambda^2}{\Delta n} E^2 . \quad (2.15)$$

Die Ergebnisse numerischer Berechnungen [29, 30, 31, 32], die auch das Gaußprofil der Brechungsindexverteilung in Betracht ziehen, weichen nur wenig von der obigen Abschätzung ab. Des weiteren kann man für Kerr- und kerrartige Medien, d.h. $\Delta n \cong n_2 I$ (siehe Kapitel A.1, Seite 56), die Distanz z_f bis zum Erreichen des Fokus eines selbstfokussierten Strahles abschätzen (siehe Kapitel A.3, Seite 57) und Gleichung 2.15 (Seite 14) weiter vereinfachen. Für diesen Fall wird 2.15 zu

$$P \geq \frac{\epsilon_0 c \pi}{16} \frac{1,22^2 \lambda^2}{n_2} \quad (2.16)$$

und für die Fokussdistanz ergibt sich:

$$z_f = \frac{k d^2}{2} \frac{1}{\theta + \sqrt{\frac{2\pi^2 n n_2 d^2}{\lambda^2} E_0^2 - 1}} \quad (2.17)$$

Abschließend muss noch angemerkt werden, dass das Konzept der Strahlfokussierung bis zum Radius Null eine mathematische Modellvorstellung ist. Wenn die Intensität durch katastrophale Fokussierung ansteigt, setzen auch andere nichtlineare Prozesse ein wie z.B. Ramanstreuung, dielektrische Störungen, Plasmaerzeugung oder auch einfach Materialzerstörung, die dem Strahl Energie entziehen. Dadurch wird eine weitere Fokussierung verhindert.

2.4 Solitonen

Phänomenologisch werden Solitonen definiert [33] als Wellenphänomene, die

- räumlich lokalisiert sind,
- sich ohne Formänderung mit konstanter Geschwindigkeit fortpflanzen,
- stabil gegenüber Streuung (Stößen) untereinander sind.

Dies trifft auf viele Phänomene aus den unterschiedlichsten Bereichen zu. Angefangen bei den gefürchteten Tsunamis, über das häufig vorkommende, langlebige Spiralmuster von Galaxien bis hin zu der alltäglichen Erfahrung, dass der Pulsschlag am Handgelenk, also weitab vom Herzen gut fühlbar ist. (Bei detaillierten Experimenten an Hunden wurde teilweise sogar eine geringe Aufsteilung beobachtet und ein sich vom Hauptpuls abhebender schwächerer Folgepuls, was mathematisch auf eine Zwei-Solitonen-Lösung zurückgeführt werden konnte [33].) In der Optik unterscheidet man zwei Arten von Solitonen: zeitliche und räumliche. Bei zeitlichen Solitonen bildet sich ein Gleichgewicht zwischen zeitlicher Selbstfokussierung eines Pulses und Dispersion und bei räumlichen Solitonen zwischen räumlicher Selbstfokussierung und Beugung aus, das die zeitliche bzw. räumliche Stabilität der Welle verursacht. Im Folgenden sollen nur die räumlichen Solitonen betrachtet werden. Für diese seien hier zwei Beispiele angeführt.

Die stationäre, nichtlineare Schrödingergleichung für Kerrmedien (siehe A.1), die die Ausbreitung eines Laserstrahls mit Strahlradius w im Medium beschreibt, lautet

$$\frac{\partial A}{\partial z} - \frac{i}{2k} \frac{\partial^2 A}{\partial x^2} = i \frac{2n_2 k}{n_0} |A|^2 A, \quad (2.18)$$

mit der Solitonenlösung (helles Soliton)

$$A = A_0 \operatorname{sech}\left(\frac{x}{w}\right) e^{(i\kappa z)} \quad (2.19)$$

$$|A_0|^2 = \frac{n_0}{2n_2} \left(\frac{1}{kw}\right)^2 \quad (2.20)$$

$$\kappa = \frac{1}{kw^2}. \quad (2.21)$$

Wird eine photorefraktive Brechungsindexänderung durch den photovoltaischen Effekt [34, 35, 36, 37, 38] erzeugt gilt die Differentialgleichung (Herleitung siehe Kapitel A.4, Seite 58)

$$u - \frac{1}{2k\gamma} \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} = \frac{a}{\gamma} \frac{u^3}{1 + u^2}, \quad (2.22)$$

wobei u mit der Amplitude A der nichtlinearen Wellengleichung durch $A(x, z) = u(x) e^{i\gamma z} I_d^{1/2}$ verknüpft ist. Dabei ist $I_d = \frac{\beta}{s}$ die Dunkelintensität, die sich aus der Dunkelgenerationsrate β und dem Photoionisationswirkungsquerschnitt s ergibt. Diese Gleichung ist nur numerisch lösbar, besitzt aber ebenfalls Solitonenlösungen sowohl für helle (gaußähnliche Intensitätsverteilung) als auch für dunkle (donutförmige Intensitätsverteilung) räumliche Solitonen [39].

3 Kristallparameter

Alle Messungen dieses und der folgenden Kapitel wurden bei 20°C bis 23°C durchgeführt. Die Kristalle waren nicht in eine Halterung eingespannt, sondern standen frei auf einer Plattform, weshalb keine Veränderung der elektrooptischen Tensorkomponenten durch den Piezoeffekt auftrat. Es standen 19 Bariumtitanatkristalle und ein SBN:60 Kristall für die Messungen zur Verfügung.

3.1 Absorptionskoeffizient und Dotierung

Zunächst wurden mit einem Spektrometer (Carl Zeiss Jena Specord M40) die Transmissionskurven der Bariumtitanatkristalle aufgenommen, da hieraus ihr Absorptionskoeffizient α berechnet werden kann

$$I = I_0 e^{-\alpha d} \Rightarrow \alpha = -\frac{1}{d} \ln \left(\frac{I}{I_0} \right) . \quad (3.1)$$

Dabei ist I_0 die auf den Kristall fallende Intensität, I die Intensität des Strahls nach Durchgang durch den Kristall und d die Dicke des Kristalls. Die Reflexion an der Eintritts- und Austrittsfläche des Kristalls kann hierbei nicht vernachlässigt werden (siehe A.5, Seite 59). Aus dem charakteristischen Verlauf der Transmissionskurven kann man des Weiteren auf die Art der Dotierung schließen [13] (siehe Abbildung 3.1).

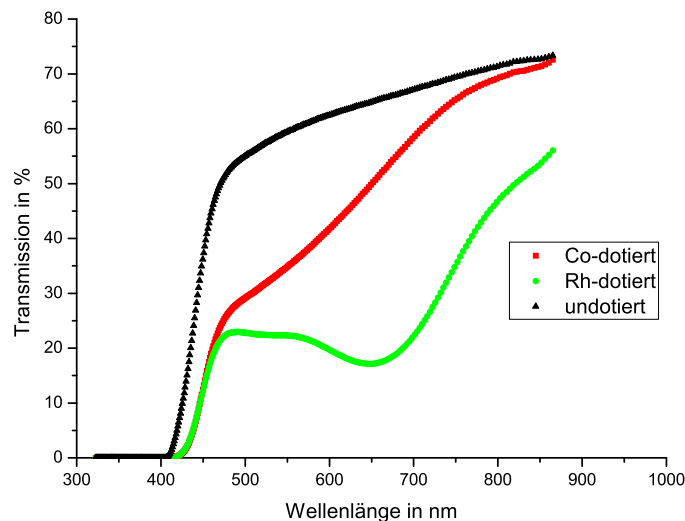


Abbildung 3.1: Die charakteristischen Transmissionskurvenverläufe für einen rhodium-, einen cobalt- und einen undotierten Kristall in Abhängigkeit von der Wellenlänge

| Kristall-nummer | a / b / c in mm | Farbe | α bei 633nm in mm^{-1} | α bei 532nm in mm^{-1} | Dotierung |
|-----------------|------------------|--------------|-------------------------------------------|-------------------------------------------|-----------|
| 1 | 4 / 4,5 / 6,7 | schwarz-grün | 1,69 | 1,48 | Rh |
| 2 | 4,8 / 5,1 / 6 | braun-gelb | 0,73 | 0,82 | Co |
| 3 | 3,9 / 5,6 / 5,1 | grün | 1,17 | 1,12 | Rh |
| 4 | 3 / 3,3 / 4 | grünlich | 0,95 | 0,9 | Rh |
| 5 | 3,1 / 3,9 / 3,4 | farblos | 0,99 | 0,99 | - |
| 6 | 3,3 / 3,6 / 6,1 | bräunlich | 0,96 | 1,04 | Co |
| 7 | 4,7 / 5,7 / 3,45 | braun | 0,93 | 1,03 | Co |
| 8 | 5,2 / 6,3 / 6,7 | braun | 0,65 | 0,74 | Co |
| 9 | 4,1 / 4,5 / 4,3 | braun | 0,75 | 0,83 | Co |
| 10 | 5,1 / 6 / 6,9 | grün | 0,75 | 0,72 | Rh |
| 11 | 4 / 4,1 / 6 | gelblich | 0,49 | 0,51 | - |
| 12 | 2,6 / 3,7 / 4,6 | farblos | 1,15 | 1,17 | - |
| 13 | 5 / 5,7 / 6,1 | gelblich | 0,59 | 0,61 | - |
| 14 | 2,8 / 4,2 / 6 | gelblich | 1,01 | 1,04 | - |
| 15 | 3 / 2,7 / 3,7 | grünlich | 1,21 | 1,2 | Rh |
| 16 | 2,1 / 4 / 2,7 | farblos | 1,21 | 1,2 | - |
| 17 | 3 / 3,4 / 4,8 | farblos | 1,15 | 1,17 | - |
| 18 | 5 / 5,1 / 6,4 | grün | 0,84 | 0,79 | Rh |
| 20 | 4,8 / 6,3 / 5 | gelblich | 0,61 | 0,63 | - |

Tabelle 3.1: Es sind die Kantenlängen a, b, c der Bariumtitanatkristalle, ihre Farbe, ihre Absorptionskoeffizienten bei 633 nm und 532 nm und ihre daraus abgeleitete Dotierung angegeben.

In Tabelle 3.1 sind die Größen der Kristalle, ihre Farbe (auch dies ist ein Hinweis auf ihre Dotierung), ihre Absorptionskoeffizienten bei 633 nm und 532 nm und ihre daraus abgeleitete Dotierung angegeben.

Da für die Messungen zur Selbstfokussierung hauptsächlich die Kristalle 20 und 11 verwendet wurden, sind in Abbildung 3.2 (Seite 18) noch die vollständigen Absorptionskurven für die in Kapitel 5 (außer in Kapitel 5.3) genutzte Durchstrahlungsrichtung wiedergegeben. Der SBN Kristall ist farblos und 2,3 cm lang (Höhe= 5 mm und Breite= 5 mm). Seine Absorptionskoeffizienten sind in Tabelle 3.2 wiedergegeben.

| a / b / c in mm | Farbe | α bei 633nm in mm^{-1} | α bei 532nm in mm^{-1} |
|-----------------|---------|----------------------------------------|----------------------------------------|
| 230 / 5 / 5 | farblos | 0,49 | 0,61 |

Tabelle 3.2: Kantenlängen a, b, c, Farbe und Absorptionskoeffizienten des SBN:60 Kristalls

3.2 Lage der optischen Achse

Es musste die Richtung der spontanen Polarisation, also der c-Achse, festgestellt werden. Als Indikator diente der pyroelektrische Effekt (siehe Abbildung 3.3).

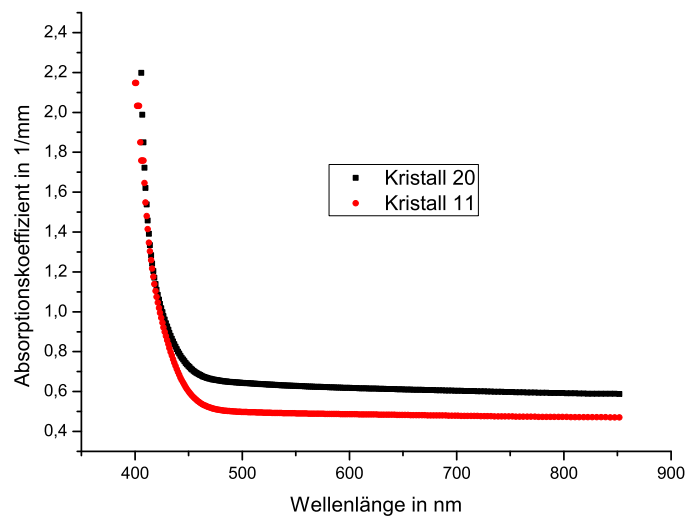


Abbildung 3.2: Absorptionskoeffizienten der Kristalle 11 und 20 in Abhängigkeit von der Wellenlänge

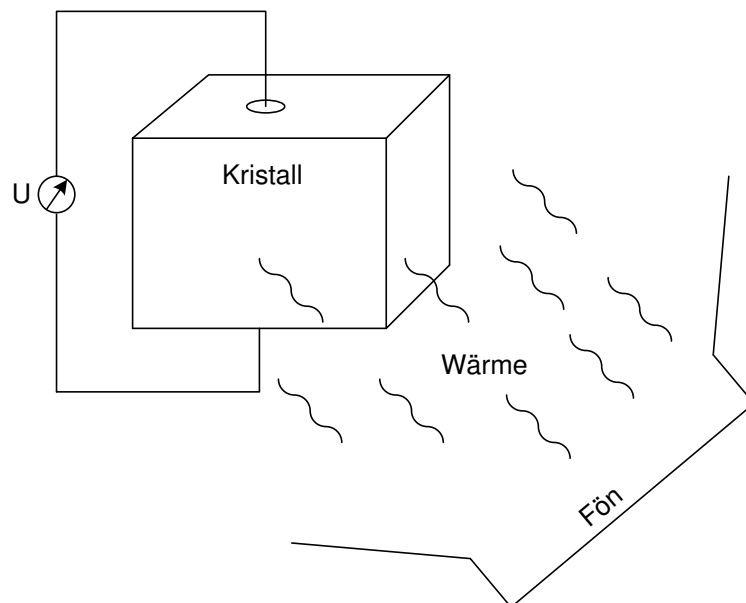


Abbildung 3.3: Die Versuchsanordnung zur Ermittlung der optischen Achse mittels des pyroelektrischen Effekts: Mittels eines Föns wird der Kristall erwärmt. Die dadurch entstehende Aufladung der Flächen senkrecht zur c -Achse wird mit einem Voltmeter gemessen

Erwärmt man einen Bariumtitanatkristall, so fließt ein Strom antiparallel zur Richtung der positiven c -Achse, d.h. das Potential am positiven Ende der c -Achse wird negativ im Vergleich zum anderen Ende. Da Spontanpolarisation und c -Achse in der tetragonalen Phase parallel sind, kann man von den sich aufladenden Flächen auf die Orientierung der c -Achse und damit auf den Kristallschnitt schließen.

Nur bei zwei Kristallen (Nr. 11 und 20) lieferte dieses Experiment keine eindeutige Aussage über die Orientierung da sich bei diesen Kristallen 4 Flächen gleichermaßen bei Erwärmung aufluden. Deshalb musste hier die Lage der c -Achse mittels einer Lauekamera ermittelt werden. Da der Kristall an einer Ecke durchstrahlt wurde, konnte dies, trotz des für Röntgenstrahlung sehr hohen Absorptionskoeffizienten von Bariumtitanat, in Transmission geschehen (siehe Abbildung 3.4). Es ergab sich, dass die c -Achse bei Kristall 20 einen Winkel

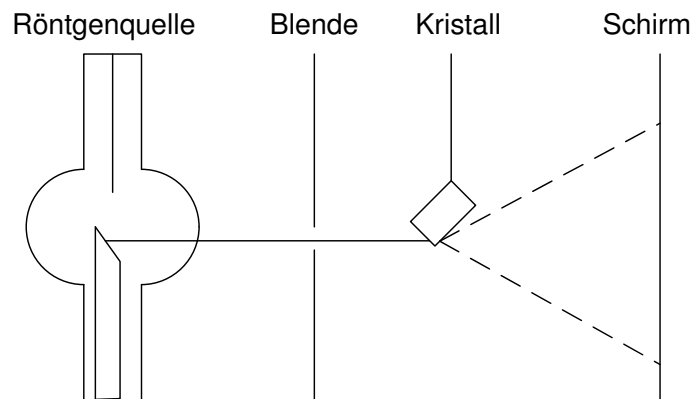


Abbildung 3.4: Ermittlung der c -Achse durch Röntgenstrahlung: Der Kristall wurde mit dem breitbandigen Spektrum einer Röntgenquelle in einer konstanten Richtung durchstrahlt.

von $43^\circ \pm 1^\circ$ mit der Eintrittsfläche einschließt (siehe Abbildung 3.5),

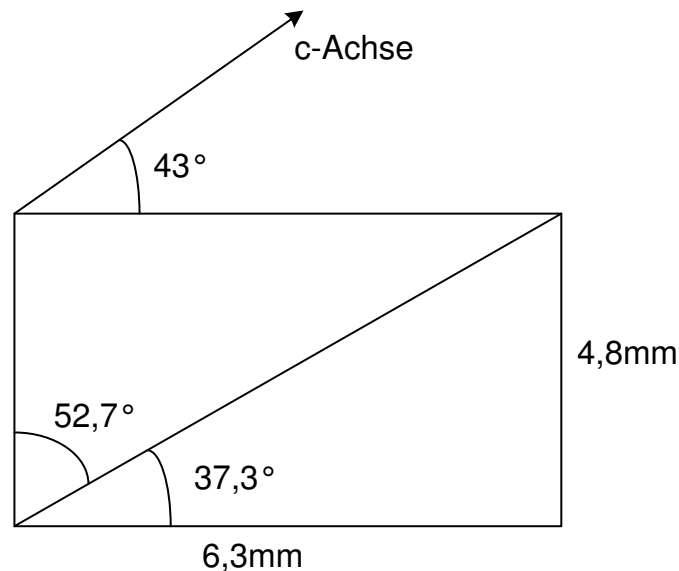


Abbildung 3.5: Lage der optischen Achse von Kristall 20 im Vergleich zur Flächendiagonale

also einen 45° -Schnitt besitzt (siehe Abbildung 3.6), was das gleichmäßige Aufladen von 4 ihrer Flächen bei Erwärmung erklärt.

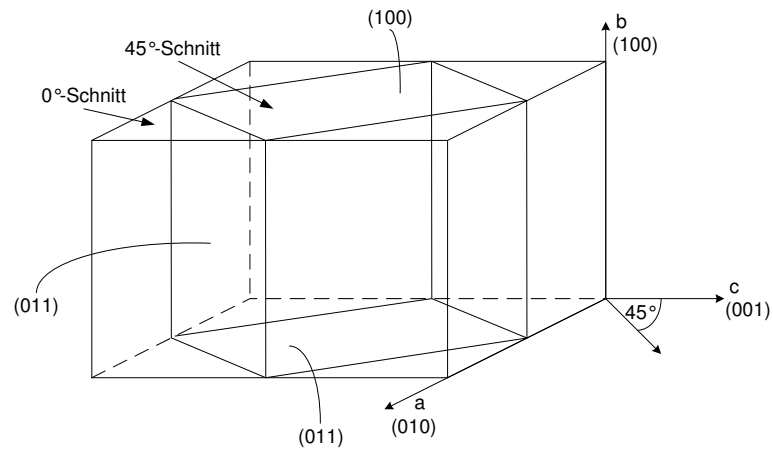


Abbildung 3.6: Der 0° Schnitt und 45° Schnitt mit den Millerindizes der Netzebenen und Kristallachsen

In Tabelle 3.3 sind die ermittelten Kristallschnitte angegeben.

| Kristallnummer | Orientierung |
|----------------|--------------|
| 1 | 0° |
| 2 | 0° |
| 3 | 0° |
| 4 | 0° |
| 5 | 0° |
| 6 | 0° |
| 7 | 0° |
| 8 | 0° |
| 9 | 0° |
| 10 | 0° |
| 11 | 45° |
| 12 | 0° |
| 13 | 0° |
| 14 | 0° |
| 15 | 0° |
| 16 | 0° |
| 17 | 0° |
| 18 | 0° |
| 20 | 45° |

Tabelle 3.3: Die, mit Hilfe des pyroelektrischen Effektes bzw. durch Messung mit einer Lau-
ekamera, ermittelten Kristallschnitte

3.3 Selbstfokussierungseffekt

Für die Bariumtitanatkristalle mit 0°-Schnitt ergaben sich senkrecht zur optischen Achse und zu den Kristallflächen zwei mögliche Durchstrahlungsrichtungen. Es kann die lange Wegstrecke oder die kurze durchstrahlt werden. Das Laserlicht war für diese Messungen parallel zur c-Achse polarisiert. Bei den Kristallen mit 45°-Schnitt wurden alle 3 möglichen Durchstrahlungsrichtungen betrachtet und jeweils 3 mögliche Richtungen der Laserstrahlpolarisation untersucht (siehe Kapitel 5.3). Da ein Gaußstrahl verwendet wurde (also der Laserstrahl in alle Richtungen annähernd den gleichen Radius besaß), ist es sinnvoll, den Strahldurchmesser auf der Austrittsfläche sowohl in horizontaler (x-Richtung) als auch in vertikaler (y-Richtung) Richtung zu betrachten. Diese 52 Messreihen sollen hier nicht im Einzelnen wiedergegeben werden, da zunächst nur die Stärke der Fokussierung eine Rolle spielt. In Tabelle 3.4 sind die Ergebnisse zusammengefasst dargestellt.

| Kristallnummer | Dotierung | Größe in mm | Effekt | bessere Weglänge | | größere Fokussierung | |
|----------------|-----------|-------------|--------|------------------|------|----------------------|------------|
| | | | | kurz | lang | x-Richtung | y-Richtung |
| 1 | Rh | 4 / 4,5 | * | + | | | + |
| 3 | Rh | 3,9 / 5,6 | * | + | | + | |
| 4 | Rh | 3 / 3,3 | - | | | | |
| 10 | Rh | 5,1 / 6 | * | + | | | + |
| 15 | Rh | 2,7 / 3 | * | + x | + y | | |
| 18 | Rh | 5 / 5,1 | - | | | | |
| 2 | Co | 4,8 / 5,1 | - | | | | |
| 6 | Co | 3,3 / 3,6 | * | + | | + | |
| 7 | Co | 4,7 / 5,7 | - | | | | |
| 8 | Co | 5,2 / 6,3 | * | + | | + | |
| 9 | Co | 4,1 / 4,5 | * | + | | + | |
| 5 | - | 3,1 / 3,9 | * | | + | | + |
| 11 | - | 4 / 4,1 | * * | + | | + | + |
| 12 | - | 2,6 / 3,7 | * * | + x | + y | | |
| 13 | - | 5 / 5,7 | * | + y | + x | | |
| 14 | - | 2,8 / 4,2 | * * | + | | + | |
| 16 | - | 2,1 / 4 | * | + | | + | |
| 17 | - | 3 / 3,4 | * * | + | | | + |
| 20 | - | 4,8 / 6,3 | * * | + | | + | + |

Tabelle 3.4: Hier sind die Kristalle in Gruppen, nach ihrer Dotierung geordnet, angeführt. Die Anzahl der * in der Spalte Effekt gibt die Stärke der Einschnürung des Strahls wieder. Durch + gekennzeichnet, ist jeweils die Weglänge, bei der sich ein größerer Selbstfokussierungseffekt zeigte, und die Richtung in der dieser am stärksten war.

Dabei steht ** für eine große Veränderung des Strahldurchmessers des Laserstrahls, * wenn überhaupt eine Veränderung auftrat und - wenn sich der Strahldurchmesser nicht änderte. Des Weiteren ist mit + die bessere Durchstrahlungsrichtung bzw. die Richtung der größeren

Einschnürung gekennzeichnet. Wenn kein großer Unterschied zwischen beiden Durchstrahlungsrichtungen bestand, aber die Einschnürung z.B. für die kürzere Wegstrecke in x-Richtung für die längere aber in y-Richtung stärker war, ist dies durch +x bzw. +y gekennzeichnet. Offensichtlich sind die nominell undotierten Kristalle am besten geeignet. Manche mit Rhodium und Kobalt dotierten Kristalle bewirkten zwar auch eine Selbstfokussierung, aber keiner von ihnen eine größere Strahleinschnürung. Bei dem undotierten Kristall 16 war die durchstrahlte Wegstrecke sehr kurz (die kleinste überhaupt), was die geringe Einschnürung erklärt. Die Kristalle 5 und 13 zeigen ebenfalls, obwohl undotiert, nur eine schwache Selbstfokussierung. Bei Kristall 5 ändert sich die Richtung der stärksten Fokussierung, wenn man die Durchstrahlungsrichtung ändert, und Kristall 13 fokussiert in x- und y-Richtung gleich stark, obwohl er einen 0° -Schnitt besitzt. Dies lässt darauf schließen, dass die Polarisation dieser beiden Kristalle gestört ist, dass also einzelne Weiß'sche Bezirke anders ausgerichtet sind, und so das Feld im Kristall stören. Die beiden Kristalle mit 45° -Schnitt (11 und 20) bewirkten eine gleich starke Einschnürung des Bündels in x- und y-Richtung im Gegensatz zu den 0° orientierten Kristallen, die den Strahl, bei senkrecht zur c-Achse polarisiertem Licht, nur in eine Richtung einschnürten. Außerdem bewirken diese beiden Kristalle die mit Abstand größte Veränderung des Strahldurchmessers unter den verwendeten Versuchsbedingungen. (Diese sind die in Kapitel 5.1, Seite 25 erläuterten.) Deshalb wurde, sofern nicht anders angegeben, für alle folgenden Messungen Kristall Nummer 20 verwendet.

4 Versuchsaufbauten

4.1 Aufbau 1

Als Lichtquelle wurde ein He-Ne-Laser (La) vom Typ LGK 7628-1 mit der Wellenlänge $\lambda = 633\text{ nm}$ und einer Austrittsblende von $d_0 = 1\text{ mm}$ verwendet. Die Strahltaile des Lasers hatte, laut Herstellerangaben, einen Durchmesser von $0,76\text{ mm}$ und lag 430 mm vom Auskoppelspiegel entfernt, d.h. 425 mm von der Strahlaustrittsöffnung. Die Divergenz des Laserstrahls betrug 1 mrad . Der Laserstrahl war zu $99,99\%$ linear polarisiert, und seine Strahlqualitätskennzahl M^2 ist kleiner als $1,2$. Die sich, nach Formel 2.15 (Seite 14) mit einer Brechungsindexänderung von $\Delta n = 10^{-5}$ und einer Intensität von $I = 4 \cdot 10^5 \frac{\text{W}}{\text{m}^2}$, ergebende Leistung für die katastrophale Selbstfokussierung beträgt $P \geq 1,3 \cdot 10^{-5}\text{ W}$ und die Fokussdistanz nach Formel 2.17 (Seite 14) $z_f = 40\text{ mm}$.

Zunächst passierte der Laserstrahl den Intensitätsfilter If und einen Glan-Thompson-Polarisator (siehe Abbildung 4.1). Zur Fokussierung des Laserstrahls wurde ein Objektiv (Ob) ver-

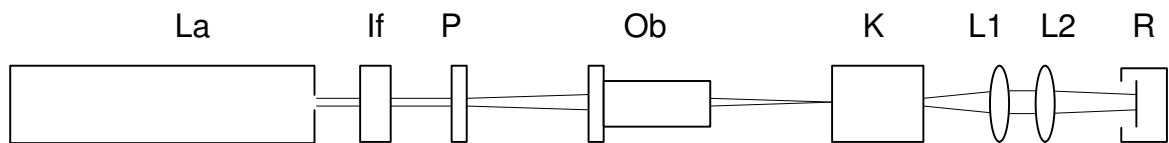


Abbildung 4.1: Versuchsaufbau für die Kapitel 5.1 und 5.3: La ist ein He-Ne-Laser, If ein Intensitätsfilter, P ein Glan-Thompson-Polarisator, Ob ein Mikroobjektiv, K der verwendete Kristall, L1 und L2 Linsen und R die CCD-Matrix.

wendet, dessen Brennebene 5 mm vor der Austrittsblende lag, und das eine Laserstrahltaile von $4\text{ }\mu\text{m}$ Durchmesser erzeugte. Wenn nicht anders beschrieben, wurde im Versuch Kristall 20 verwendet, und senkrecht zur Frontfläche durchstrahlt. Der Kristall lag frei auf einer Plattform. Durch ein Linsensystem mit den Brennweiten 55 mm (L1) und 100 mm (L2) wurde, der aus dem Kristall austretende Laserstrahl, im Maßstab 1:2 auf eine CCD-Matrix, die mit einem PC verbunden war, abgebildet. Die CCD besaß 1360×1024 Pixel, wobei ein Pixel $4,65\text{ }\mu\text{m} \times 4,65\text{ }\mu\text{m}$ groß war. Zur Aufnahme der Messreihen wurde das Programm DATARAY der gleichnamigen Firma verwendet. Damit konnten sowohl Strahlbilder als auch Intensitätsprofile aufgenommen werden. Mittels des Programms wurden auch der Strahldurchmesser bei den Intensitätswerten $\frac{1}{2}I_{\text{max}}$ und $\frac{1}{e^2}I_{\text{max}}$ ermittelt, und die prozentuale Änderung der Maximalintensität gemessen. Die Schwankung des Wertes des Strahldurchmessers betrug $20\text{ }\mu\text{m}$, was in den, im Folgenden angegebenen Graphen, einem Messfehler von $\pm 10\text{ }\mu\text{m}$ bzw. $\pm 7\%$ entspricht.

4.2 Aufbau 2

Hier steht La nicht nur für den oben beschriebenen He-Ne-Laser, sondern es könnte auch ein Nd:YAG-Laser mit einer Wellenlänge von $\lambda = 532\text{ nm}$ verwendet werden. Hinter dem Intensitätsfilter If und dem Glan-Thompson-Polarisator befand sich ein Strahlaufweitungssystem, dass aus den Linsen L1 mit 55 mm Brennweite und L2 mit 400 mm Brennweite bestand (siehe Abbildung 4.2). Mittels der Blende B konnte so der Durchmesser, des auf die Fokus-

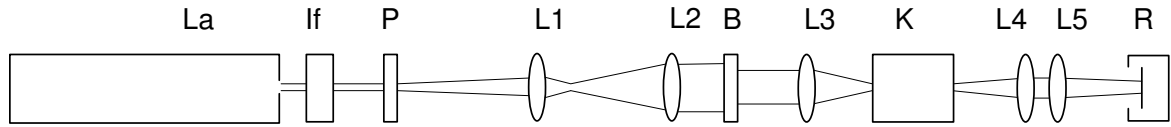


Abbildung 4.2: Versuchsaufbau für die Kapitel 5.2, 5.4 und 6: La ist entweder ein He-Ne-Laser oder ein Nd:YAG-Laser, If ein Intensitätsfilter, P ein Glan-Thompson-Polarisator, L1, L2 und L3 sind Linsen, B eine Blende, K der verwendete Kristall, L4 und L5 Linsen und R die CCD-Matrix

sierungslinse L3 (5 mm Brennweite) fallenden Strahls, zwischen 10 mm und 1 mm variiert werden. Somit konnte der Durchmesser des Fokus auf der Kristallfrontfläche zwischen $4\text{ }\mu\text{m}$ und $20,2\text{ }\mu\text{m}$ gewählt werden. Die Linsen hinter dem Kristall hatten wie im vorigen Aufbau die Brennweiten 55 mm (L4) und 100 mm (L5). Die übrigen Parameter sind mit denen von Aufbau 1 (Kapitel 4.1) identisch.

5 Parametervariation der Messungen in BaTiO_3

Im Folgenden soll der Einfluss der verschiedenen Versuchsparameter wie Leistung, Intensität, Fokusbereich, Fokusbereich, Polarisationsrichtung u.a. auf die Stärke der Selbstfokussierung und das zeitliche Verhalten dieses Effektes gezeigt werden.

5.1 Ordentliche Polarisationsrichtung

Zunächst war der Laserstrahl senkrecht zur optischen Achse, also in y-Richtung polarisiert. Der Versuchsaufbau war der in Kapitel 4.1 (Aufbau 1) beschriebene. Für die Aufnahme der abgebildeten Messreihen (siehe Abbildung 5.1 und 5.2) wurde eine Intensität von $0,2 \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ und die Hintergrundbeleuchtung I_0 (siehe Kapitel 5.1.2, Seite 27) verwendet, und der Fokus des Objektivs lag auf der Kristallfrontfläche. Dies sind die optimalen Bedingungen für diese Polarisationsrichtung, wie im Folgenden gezeigt wird.

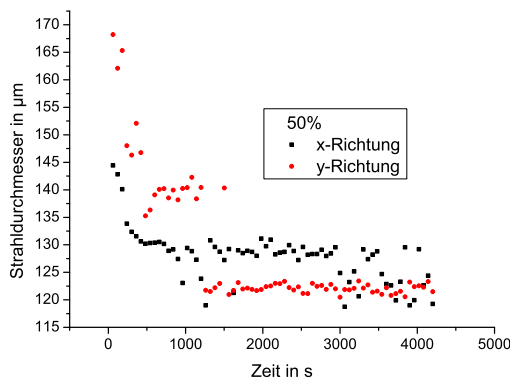


Abbildung 5.1: Selbstfokussierung des Strahls bei $\frac{1}{2}I_{max}$

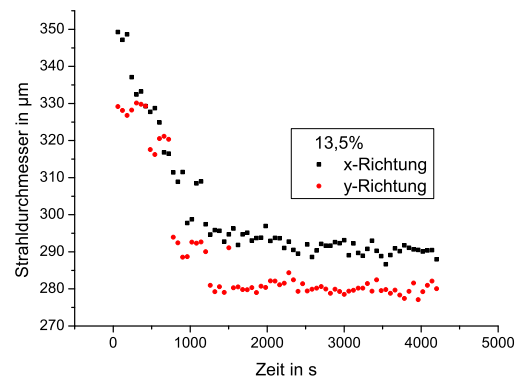


Abbildung 5.2: Selbstfokussierung des Strahls bei $\frac{1}{e^2}I_{max}$

Der Strahldurchmesser verkleinerte sich unter diesen Bedingungen innerhalb von 17 Minuten um $50 \mu\text{m}$, also um 30 % (siehe Abbildung 5.1 und 5.2).

Offensichtlich war die Einschnürung des Strahls in x- und y- Richtung sowohl für $\frac{1}{2}I_{max}$ als auch für $\frac{1}{e^2}I_{max}$ etwa gleich groß (siehe Abbildung 5.3). In den nächsten Abschnitten sollen deshalb immer nur die zeitlichen Verläufe für die y-Richtung also senkrecht zur optischen Achse und parallel zur Polarisationsrichtung bei $\frac{1}{2}I_{max}$ wiedergegeben werden.

5.1.1 Fokusbereich

Die Fokusbereich des verwendeten Objektivs lag 5 mm vor seiner Austrittsblende (sowohl laut Herstellerangaben als auch nach eigener Messung). Im Fokus eines Gaußstrahls sind die

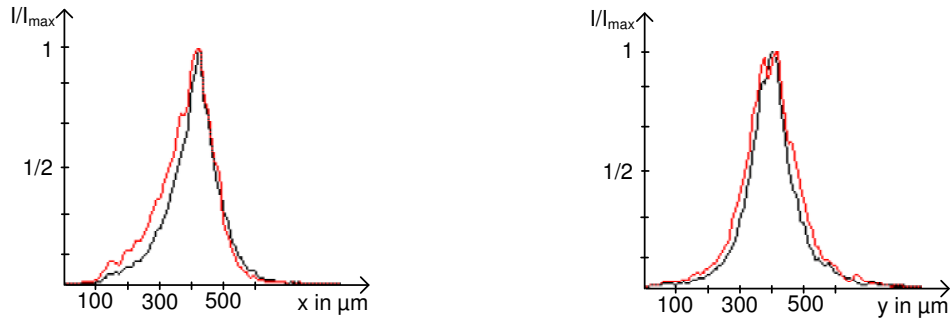


Abbildung 5.3: Intensitätsprofile an der Austrittsfläche des Bariumtitanatkristalls vor (rot) und nach (schwarz) der Fokussierung in x- und y-Richtung jeweils normiert auf die Maximalleistung

Wellenfronten Ebenen. Variiert man also die Entfernung des Objektives zum Kristall, ändert sich nicht nur der Durchmesser und damit die Intensität des Strahls im Moment des Eintritts in den Kristall, sondern auch die Krümmung der Wellenfront des auftreffenden Laserstrahls. Dies beeinflusst sowohl die Stärke der Einschnürung des Strahls, als auch den zeitlichen Verlauf des Selbstfokussierungseffektes. In Abbildung 5.4 und 5.5 ist der Strahldurchmesser in Abhängigkeit von der Einstrahlzeit für unterschiedliche Lagen der Fokusfläche (siehe Abbildung 5.6) wiedergegeben.

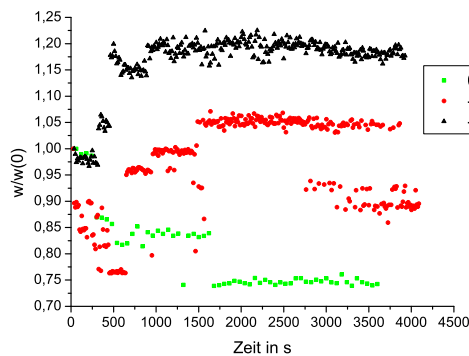


Abbildung 5.4: Zeitlicher Verlauf des Strahldurchmessers wobei der Fokus innerhalb des Kristalls lag

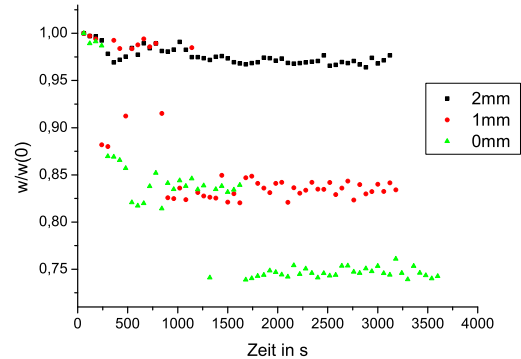


Abbildung 5.5: Zeitlicher Verlauf des Strahldurchmessers wobei der Fokus außerhalb des Kristalls lag

Liegt der Fokus innerhalb des Kristalls, ergibt sich ein transientes Verhalten, an das sich eine Defokussierung anschließt. Je weiter der Fokus außerhalb des Kristalls liegt, umso kleiner ist die Einschnürung des Strahls.

Der Effekt ist dann am stärksten, wenn der Fokus auf der Eintrittsfläche des Kristalls liegt. Das bedeutet aber auch bei kleinstem Fokusdurchmesser und größter Eintrittsintensität. Die, durch die Verschiebung des Objektives sinkende, Intensität kann nach Kapitel 5.1.5 (Seite 30) nur eine Verringerung der Stärke der Fokussierung, aber keinen Übergang zu transientem Verhalten wie in Abbildung 5.4 bewirken. Der steigende Strahldurchmesser sollte die Fokussierung, wie in Kapitel 5.2.3, Seite 34 gezeigt, verbessern und nicht verschlechtern. Die

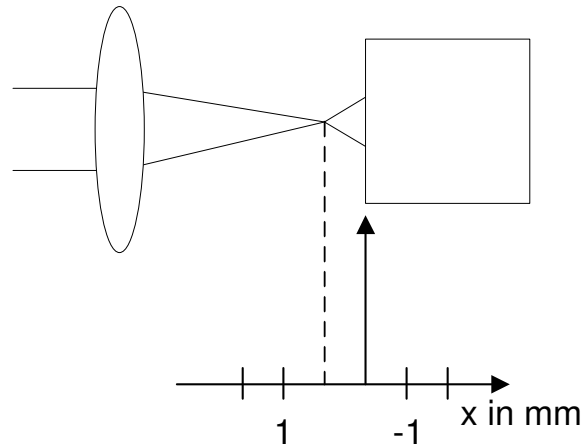


Abbildung 5.6: Fokussierung in Beziehung zur Eintrittsfläche des Kristalls

qualitativen Änderungen in den Kurvenverläufen können also nicht durch die Änderung von Intensität oder Strahldurchmesser erklärt werden, sondern sind auf die veränderte Fokussierung und die damit verbundene Änderung der Krümmung der Wellenfront zurückzuführen.

5.1.2 Hintergrundbeleuchtung

Die Dunkelintensität eines photorefraktiven Kristalls kann durch gleichmäßige Ausleuchtung mit monochromatischem, polarisiertem Licht künstlich erhöht werden, was jedoch den Versuchsaufbau verkompliziert.

Der hier beschriebene Selbstfokussierungseffekt trat auch ohne zusätzliche monochromatische Beleuchtung des Kristalls auf. Jedoch zeigte sich, dass die Stärke der Fokussierung von der im Labor vorhandenen Resthelligkeit abhängig war, die vor allem von der Deckenbeleuchtung erzeugt wurde. Da Glühlampen ein kontinuierliches Spektrum besitzen, was es erschwert die Intensität festzustellen, wurde zum Vergleich von Hintergrundintensität und Laserintensität die Hintergrundintensität bei einer Wellenlänge von $\lambda = 633 \text{ nm}$ gemessen. An dieser Stelle soll nur festgestellt werden, dass für ordentlich polarisiertes Licht, im Gegensatz zu außerordentlich polarisiertem Licht, eine Abhängigkeit des Selbstfokussierungseffektes von der Umgebungshelligkeit besteht (siehe Abbildung 5.7). Für genauere Angaben über den Wert dieser Hintergrundintensität und die spezifischen, den Selbstfokussierungseffekt beeinflussen, Wellenlängen, müssen umfangreichere Messungen unter Verwendung von Spektralfiltern und Lasern durchgeführt werden. Es existiert also eine optimale Umgebungshelligkeit I_0 . Ist die Hintergrundintensität geringer als I_0 ist die Fokussierung schwächer, ist sie aber größer als I_0 , tritt ein transienter Zustand auf (siehe Abbildung 5.7). Steigt die Umgebungshelligkeit weiter an, tritt eine leichte Defokussierung auf. Das Verhalten des Materials ist in dieser Polarisationsrichtung also abhängig vom Verhältnis $\frac{I}{I_d}$, wobei I die Laserintensität und I_d die Hintergrundintensität ist, was typisch für den photorefraktiven Effekt ist (siehe Formel 2.22, Seite 15).

5.1.3 Löschvorgang

Wie im Kapitel 2.3, Seite 13 beschrieben, erzeugt der Laserstrahl im Kristall eine Änderung des Brechungsindex, die die Selbstfokussierung verursacht. Durch gleichmäßige Bestrahlung

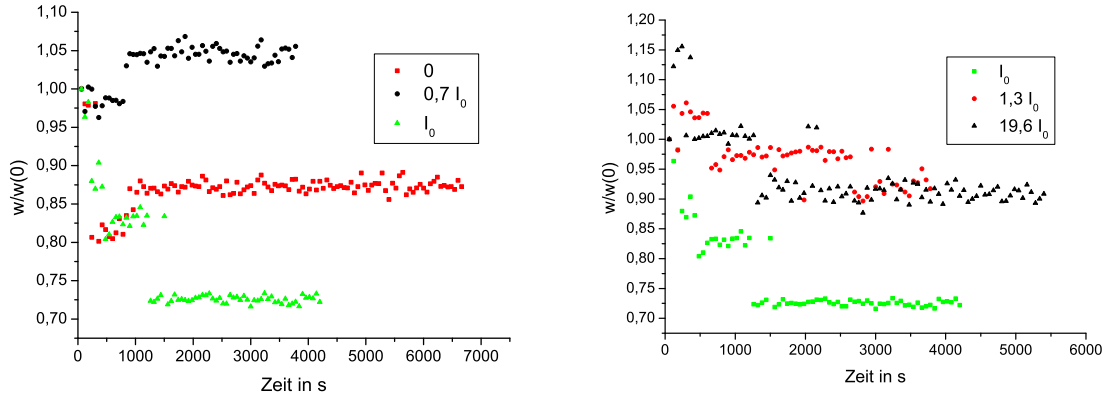


Abbildung 5.7: Zeitlicher Verlauf des Strahldurchmessers in Abhängigkeit von der Hintergrundbeleuchtung (die Laserintensität war während der Messung konstant)

mit weißem Licht, kann die in den Kristall eingeschriebene, wellenleitende Struktur zerstört, also gelöscht werden. Für die Reproduzierbarkeit der Messungen ist entscheidend, wie lange gelöscht werden muss, bis sich der Kristall wieder in seinen ursprünglichen Zustand befindet. Zur Ermittlung dieser Zeit wurde der Kristall zunächst in den Zustand größter Fokussierung versetzt, also so lange durchstrahlt, bis der Gleichgewichtszustand der Fokussierung erreicht war. Dann wurde der Laserstrahl ausgeschaltet und das Löschlicht, das von einer Weißlichtdiode erzeugt wurde, z.B. für 5 Minuten angeschaltet. Danach wurde das Weißlicht wieder ab- und der Laserstrahl angeschaltet, und der Durchmesser des Laserstrahls aufgenommen usw.. Es ergaben sich, die in Abbildung 5.8 dargestellten, Löschkurven für den Strahldurchmesser und die damit verbundene Maximalintensität des Laserstrahls hinter dem Kristall (siehe Abbildung 5.9). Offensichtlich ist auch der Löschvorgang genau wie der Schreibvorgang in x- und y-Richtung gleich schnell.

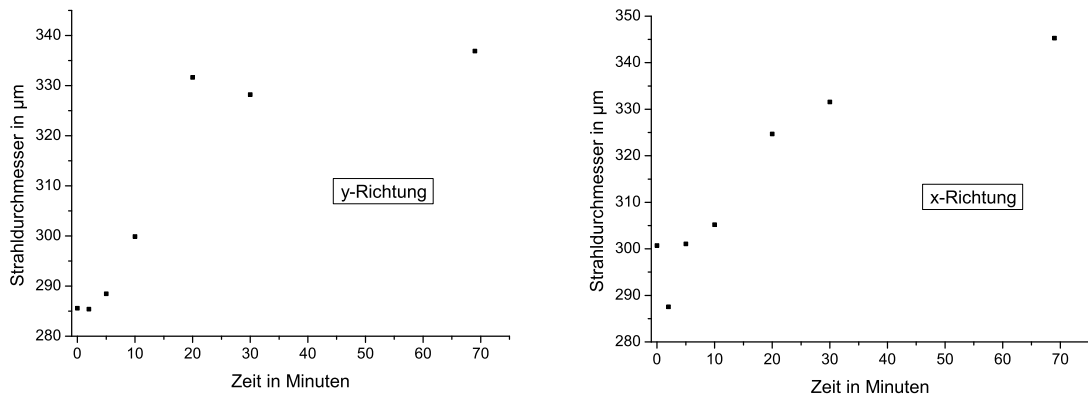


Abbildung 5.8: Strahldurchmesser auf der Kristallaustrittsfläche in Abhängigkeit von der Löschozeit

Um die Versuchszeiten im Rahmen zu halten, wurde vor jedem Messdurchlauf nur 30 Mi-

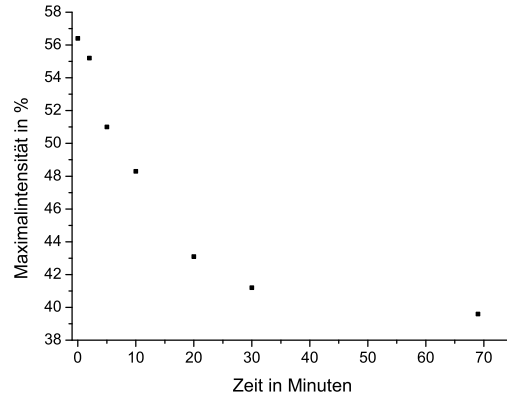


Abbildung 5.9: Maximalintensität auf der CCD in Abhängigkeit von der Löschzeit

nuten gelöscht. Nach dieser Zeit ist der Kristall zwar noch nicht vollständig in den Ausgangszustand zurückversetzt, aber in diesem Zeitbereich beginnt die Löschkurve zu konvergieren. Dadurch wird zwar nicht die maximal mögliche Stärke der Fokussierung ausgenutzt, aber die Messwerte sind reproduzierbar (siehe Kapitel 5.1.4), und die Fokussierungsstärke ausreichend um den Einfluss der verschiedenen Versuchsparameter zu untersuchen. Den Kristall vollständig zu löschen, wäre sehr aufwendig, da Bariumtitanat sehr gute Speichereigenschaften besitzt [40], was bei Raumtemperatur Löszeiten von 2000 Jahren zur Folge hat.

5.1.4 Reproduzierbarkeit

Es wurde untersucht, ob die Messungen anhaltende, nicht löschbare Veränderungen im Kristall hervorrufen und mit welcher Genauigkeit die Messreihen reproduzierbar sind. Die rote und die schwarze Kurve in Abbildung 5.10 entstanden im Abstand von ca. 2 Wochen.

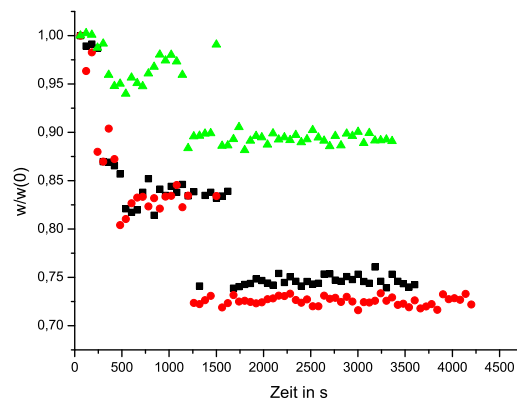


Abbildung 5.10: Auf den Strahldurchmesser zur Zeit $t=0$ s normierter Strahldurchmesser in Abhängigkeit von der Einstrahlungszeit im Abstand von 2 Wochen (rote und schwarze Kurve) und bei Durchstrahlung eines anderen Kristallbereichs (grüne Kurve)

Die grüne Kurve entstand bei der Durchstrahlung eines anderen Kristallbereichs. Da das Material anisotrop ist, ist die quantitative Reproduzierbarkeit der Messungen also nur gewährleistet, solange der verwendete Kristallbereich beibehalten wird. Qualitativ reproduzierbar ist der Versuch dagegen über die gesamte Eintrittsfläche des Kristalls.

5.1.5 Laserleistung

Erhöht man die Intensität des Laserstrahls, wird die Fokussierung zunächst stärker, geht dann zu transienten Zuständen über, und verschwindet schließlich (siehe Abbildung 5.11). Es gibt

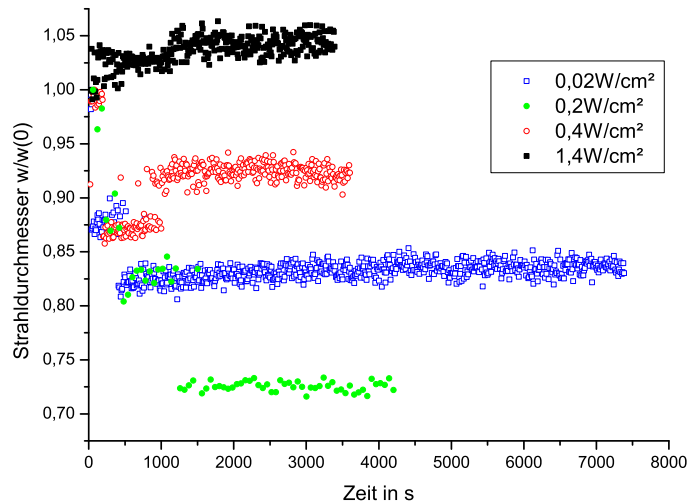


Abbildung 5.11: Änderung des zeitlichen Verlaufs der Fokussierung mit der Laserleistung

also einen Stabilitätsbereich der Bestrahlungsintensität, außerhalb dessen keine Selbstfokussierung beobachtet werden kann. Dieses Verhalten ist typisch für eine durch den photorefraktiven Effekt verursachte Fokussierung [41, 42]. Wären Kerreffekt oder thermische Änderungen die Hauptverursacher der Nichtlinearität, würde die Brechzahländerung mit steigender Intensität anwachsen und damit auch die Stärke der Fokussierung.

5.2 Außerordentliche Polarisation

Für alle folgenden Messungen wurde Aufbau 2 (siehe Kapitel 4.2, Seite 24) verwendet. Das Laserlicht war außerordentlich, also im Winkel von 43° (siehe Abbildung 5.12, Seite 31 und 3.5, Seite 19) zur optischen Achse polarisiert.

Die übrigen Versuchsparameter wurden hier identisch zu denen in Kapitel 5.1, Seite 25 als optimal angegebenen gewählt. Die Fokussierung in x-Richtung war für diese Polarisationsrichtung wesentlich stärker als die für ordentlich polarisiertes Licht (siehe Abbildung 5.13). Senkrecht dazu, also in y-Richtung fand aber hier effektiv nahezu keine Fokussierung statt. Der Strahldurchmesser durchlief zwar eine Einschnürung, diese war aber transient. Ein Effekt ist also nur in der Ebene zu beobachten, in der auch die c-Achse liegt. Des Weiteren betrifft die Fokussierung nicht mehr gleichmäßig den ganzen Strahl. Im Strahlzentrum (also über $\frac{1}{2}I_{max}$) trat eine stärkere Fokussierung auf als an den Strahlflanken. Sofern nicht anders

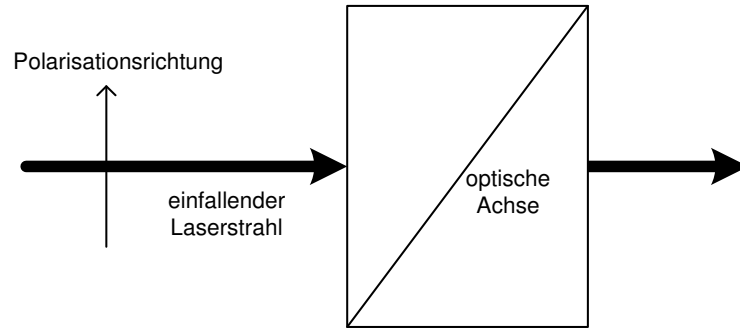


Abbildung 5.12: Polarisations- und Durchstrahlungsrichtung

angegeben, wurde im Folgenden der Verlauf des Strahldurchmessers in x-Richtung für $\frac{1}{2}I_{max}$ dargestellt.

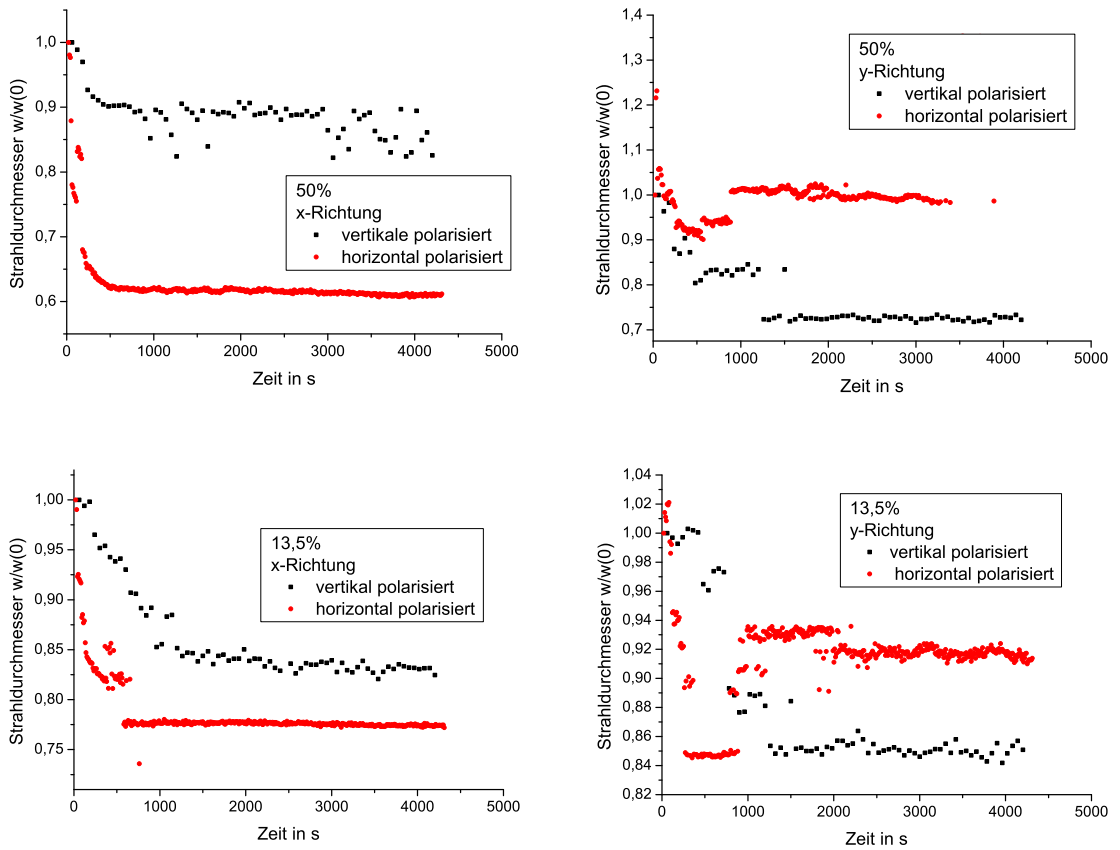


Abbildung 5.13: Vergleich des zeitlichen Verhaltens der Selbstfokussierung bei ordentlich (schwarz) und außerordentlich (rot) polarisiertem Licht für $\frac{1}{2}I_{max}$ und $\frac{1}{e^2}I_{max}$

5.2.1 Hintergrundbeleuchtung

Ein weiterer Unterschied des zeitlichen Verhaltens bei den beiden Polarisationsrichtungen zeigt sich bei der Veränderung der Hintergrundbeleuchtung (siehe Kapitel 5.1.2, Seite 27). Die Versuchsparameter wurden identisch denen in Kapitel 5.4, Seite 37 gewählt. Es ist zumindest im gewählten Intensitätsbereich keine Abhängigkeit von der Hintergrundbeleuchtung feststellbar, wie in Abbildung 5.14 zu erkennen.

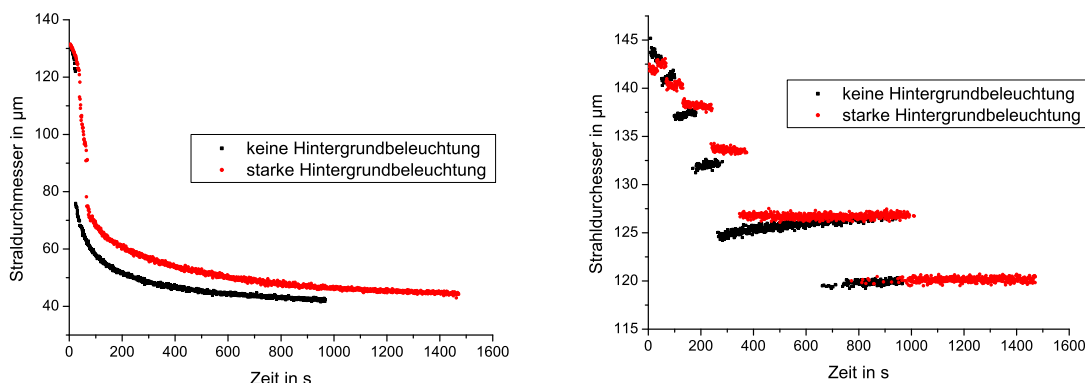


Abbildung 5.14: Zeitlicher Verlauf des Strahldurchmessers in x-Richtung (linke Graph) und y-Richtung (rechte Graph) bei verschiedenen Umgebungshelligkeiten

Der Versuch lieferte sowohl in völliger Dunkelheit als auch bei starker Umgebungshelligkeit die gleichen Ergebnisse. Alle folgenden Versuche wurden ohne Hintergrundbeleuchtung durchgeführt.

5.2.2 Laserleistung

Zunächst wurde ein Fokussdurchmesser von $13,4 \mu\text{m}$ verwendet. Bereits bei einer Intensität von $0,016 \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ trat eine Fokussierung auf. Mit steigender Intensität wurde der Effekt stärker, bis die Fokussierungsstärke bei ca. $0,4 \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ wieder zu sinken begann (siehe Abbildung 5.15, Seite 33). Bei dieser Richtung der Polarisation war der Stabilitätsbereich, in dem Fokussierung stattfand, also etwa doppelt so groß wie bei ordentlicher Polarisation (siehe Kapitel 5.1.5, Seite 30). Außerdem beschleunigt sich die Fokussierung mit steigender Intensität erheblich, wie in Abbildung 5.16 (Seite 33) dargestellt. Wird bei $0,02 \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ noch etwa eine Stunde bis zum Erreichen des Gleichgewichtszustandes benötigt, stellt sich dieser bei der zehnfachen Leistung schon nach etwa 4 Minuten ein. Auch im Vergleich zu ordentlich polarisiertem Licht verlief der Selbstfokussierungseffekt erheblich schneller. Bei ordentlicher Polarisation wurden etwas mehr als 15 Minuten bis zum Erreichen des Endzustand benötigt (siehe Abbildung 5.1, Seite 25), wohingegen es bei außerordentlicher Polarisation nur 4 Minuten dauerte (siehe Abbildung 5.16), bis der Konvergenzdurchmesser erreicht war.

Dieselbe Messung wurde auch für einen Fokussdurchmesser von $4 \mu\text{m}$ durchgeführt, wobei sich der gleiche Verlauf wie in Abbildung 5.15 ergab.

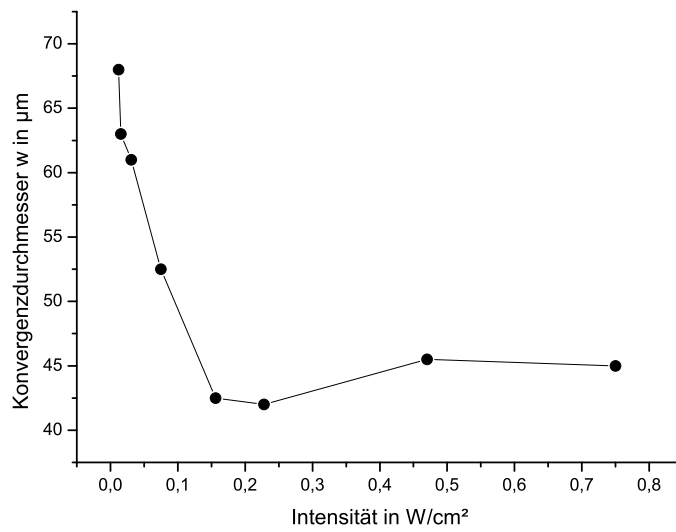


Abbildung 5.15: Im stationären Zustand erreichter Strahldurchmesser in Abhängigkeit von der eingestrahlichten Intensität

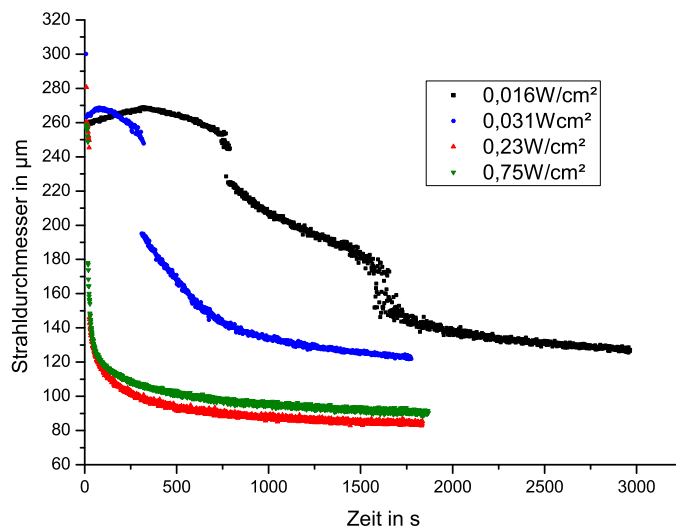


Abbildung 5.16: Zeitlicher Verlauf des Strahldurchmessers für unterschiedliche Intensitäten des einfallenden Strahls

5.2.3 Fokusedurchmesser

Mit Hilfe der Blende in Aufbau 2 (siehe Kapitel 4.2, Seite 24) konnte der, auf die Fokussierungslinse fallende, Strahldurchmesser und damit der Durchmesser der Strahltaile variiert werden. Es zeigte sich, dass der Konvergenzradius des Strahls vom Fokusedurchmesser abhängig ist, wie in Abbildung 5.17 dargestellt.

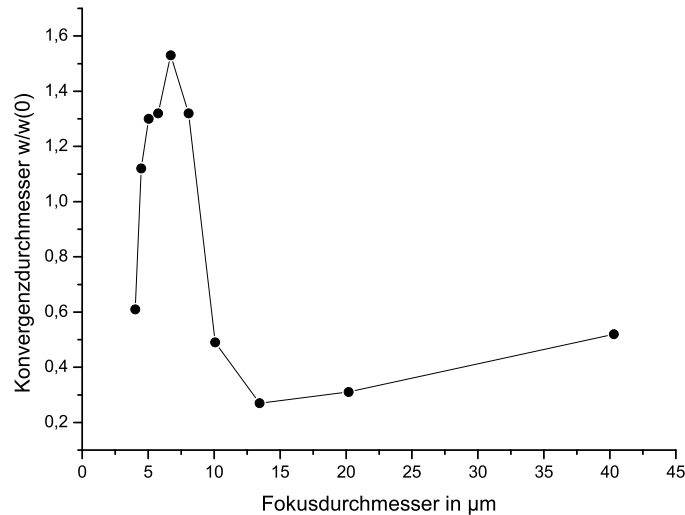


Abbildung 5.17: Im stationären Zustand erreichter Strahldurchmesser in Abhängigkeit vom Durchmesser des Fokus auf der Kristallfrontfläche

Damit die Veränderung des Fokusedurchmessers nicht auch die Intensität änderte, wurde jeweils die Leistung entsprechend angepasst, so dass immer im Stabilitätsbereich der Intensität zwischen $0,15 \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ und $0,4 \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ gemessen wurde. 10 mm Blendendurchmesser entsprach also dem verwendeten Fokusedurchmesser in Aufbau 1 (siehe Kapitel 4.1, Seite 23), betrug also $4 \mu\text{m}$. Für diesen Strahldurchmesser trat eine Fokussierung ein, die zunächst schwächer wurde wenn der Fokusedurchmesser stieg (siehe Abbildung 5.17). Dann jedoch, bei noch größeren Fokusedurchmessern, wurde sie stärker als für sehr kleine Fokusedurchmesser. Der optimale Fokusedurchmesser ist größer als $12 \mu\text{m}$. Darüber hinaus ist offensichtlich die Geschwindigkeit der Fokussierung nicht nur abhängig von der eingestrahlten Leistung, sondern auch vom Fokusedurchmesser. Eine Vergrößerung der Fokussierungsstärke, d.h. eine Annäherung an die optimalen Versuchsbedingungen, ist auch in diesem Fall mit einer Beschleunigung des Wirkens der Nichtlinearität, wie man in Abbildung 5.18 deutlich erkennt, verbunden.

Die Vermutung, dass für kleine Fokusedurchmesser breathing auftrat, also ein periodischer Anstieg und Abfall des Strahldurchmessers, liegt nahe. Das erneute Sinken des Konvergenzdurchmessers bei kleinen Fokusedurchmessern könnte so erklärt werden. (Es hätte dann zufällig ein Minimum an der Stelle der Kristallrückfläche gelegen.) Breathing zeigt, wie sich aus Simulationen ergab (siehe Kapitel 8.3, Seite 48), eine Abhängigkeit der Einschnürungsfrequenz von der Intensität. Es sollte sich also bei Veränderung der eingestrahlten Intensität eine periodische Änderung des Durchmessers ergeben, gegen den der Strahl konvergiert. Dies konnte jedoch nicht beobachtet werden (siehe Kapitel 5.2.2).

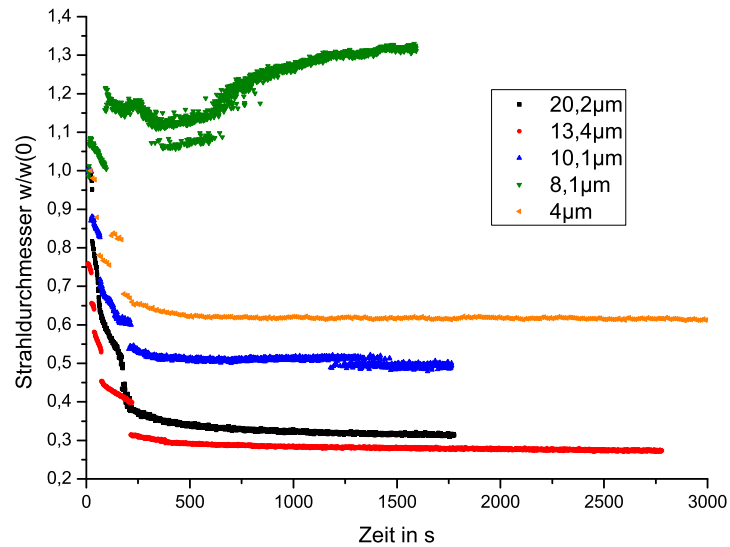


Abbildung 5.18: Zeitlicher Verlauf des Strahldurchmessers für unterschiedliche Fokussdurchmesser des einfallenden Strahls

5.2.4 Wellenlänge

Hier wurde in Aufbau 2 (siehe Kapitel 4.2, Seite 24) statt dem He-Ne-Laser ein Nd:YAG-Laser verwendet, der Licht der Wellenlänge 532 nm lieferte. Wie Abbildung 5.19 zeigt, hing die Stärke der Fokussierung offensichtlich nicht von der Wellenlänge ab.

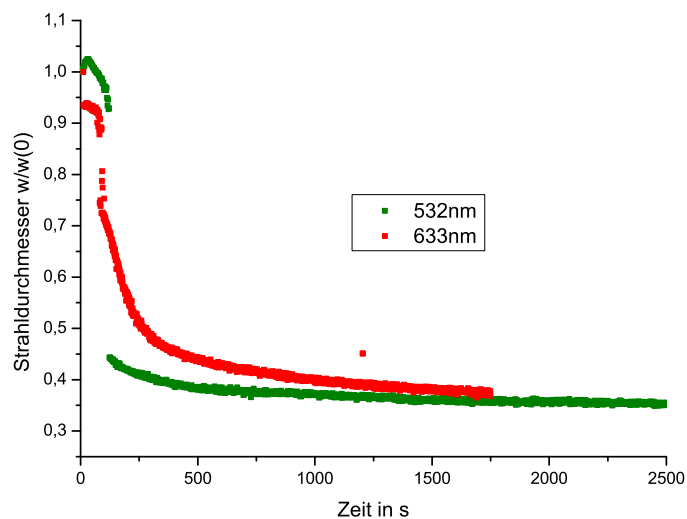


Abbildung 5.19: Zeitlicher Verlauf des Strahldurchmessers bei einer Wellenlänge von 633 nm und einer Wellenlänge von 532 nm

5.3 Durchstrahlungsrichtung

In allen bisher gezeigten Messungen wurde der Kristall in seiner kürzesten Länge durchstrahlt. Es gab aber noch 2 weitere mögliche Durchstrahlungsrichtungen A und B (siehe Abbildung 5.20).

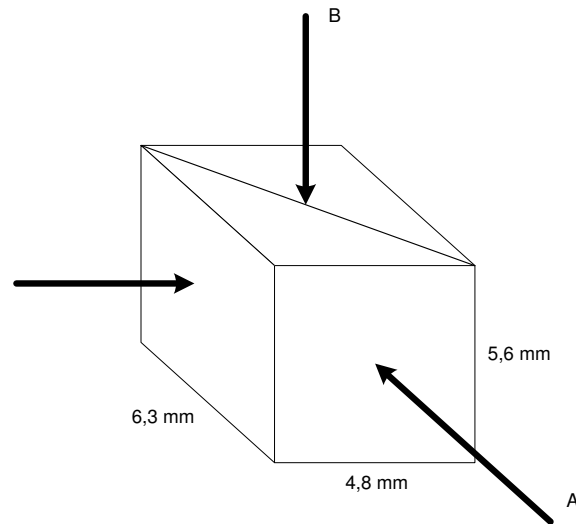


Abbildung 5.20: Mögliche Durchstrahlungsrichtungen bei Kristall 20

Sowohl in der für die obigen Messungen genutzten Anordnung als auch in der Durchstrahlungsrichtung A, ist es möglich, Doppelbrechung zu beobachten (siehe Abbildung 5.21), wobei die Distanz zwischen den zwei erzeugten Strahlen in der Durchstrahlungsrichtung A erwartungsgemäß am größten war (siehe Abbildung 5.22). Es wurde sowohl ordentlich und

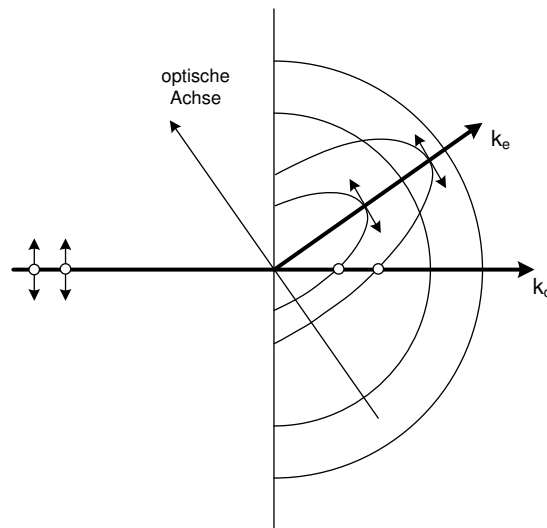


Abbildung 5.21: Phasenflächen der ordentlich und außerordentlich polarisierten Welle

außerordentlich polarisiertes Laserlicht verwendet, als auch Licht, dessen Polarisationsrichtung im Winkel von 45° zu der Horizontalen bzw. Vertikalen lag. Es konnte jedoch in der

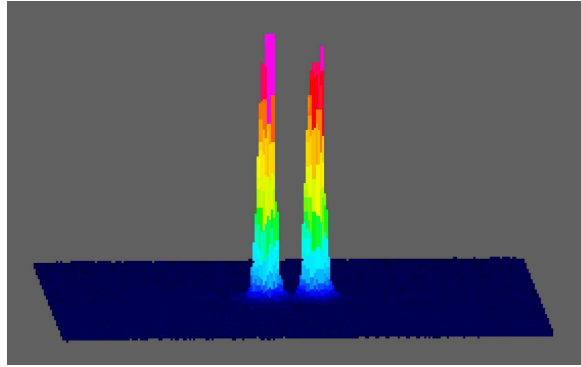


Abbildung 5.22: Doppelbrechung in der Durchstrahlungsrichtung A

Durchstrahlungsrichtung A keine Fokussierung für irgendeine Polarisationsrichtung beobachtet werden. Es trat auch keine Umkopplung der Intensität zwischen den beiden, durch die Doppelbrechung vorhandenen, Strahlkomponenten auf.

In Richtung B wurde der Kristall senkrecht zur optischen Achse durchstrahlt. Es konnte also keine Doppelbrechung auftreten (siehe Abbildung 5.21). Das Verhalten des Laserstrahls parallel, senkrecht und im Winkel von 45° zur optischen Achse polarisiert wurde untersucht. Es konnte jedoch in keinem der Fälle eine Einschnürung des Strahls beobachtet werden.

5.4 Optimale Bedingungen

Zusammenfassend soll noch die Veränderung des Strahldurchmessers unter optimalen Bedingungen dargestellt werden. Die größte Selbstfokussierung konnte bei der Durchstrahlung der kürzesten Wegstrecke, außerordentlich polarisiertem Licht, einem Fokusbereich von $13,4 \mu\text{m}$ und einer Intensität von $0,23 \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ gemessen werden. Dabei lag der Fokus auf der Kristallfrontfläche, und weder Hintergrundhelligkeit noch die Wellenlänge des verwendeten Lichtes beeinflussten die Einschnürung.

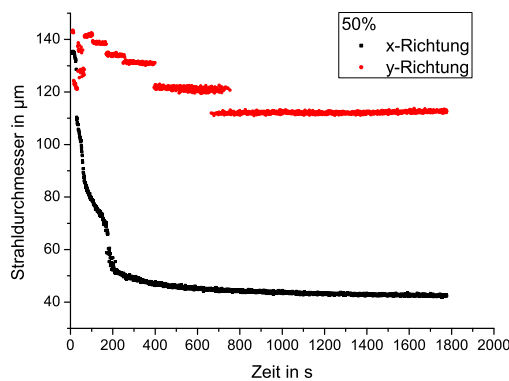


Abbildung 5.23: Selbstfokussierung des Strahls bei $\frac{1}{2}I_{max}$

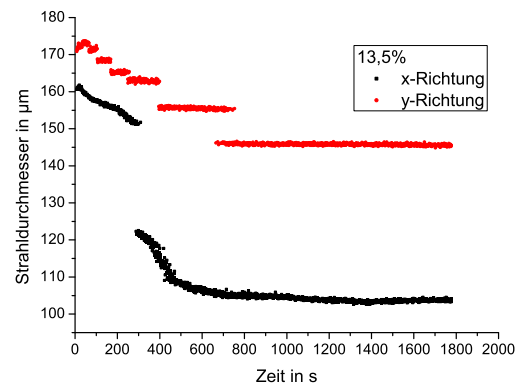


Abbildung 5.24: Selbstfokussierung des Strahls bei $\frac{1}{e^2}I_{max}$

Die Einschnürung in der Horizontalen (x-Richtung) ist wesentlich größer als in der Ver-

tikalen (y-Richtung), wie in Abbildung 5.23 und 5.24 deutlich zu erkennen. Außerdem ist die Fokussierung nahe dem Strahlzentrum also der Maximalintensität deutlich größer (siehe Abbildung 5.25). In den Randbereichen des Bündels also bei niedrigeren Intensitäten war

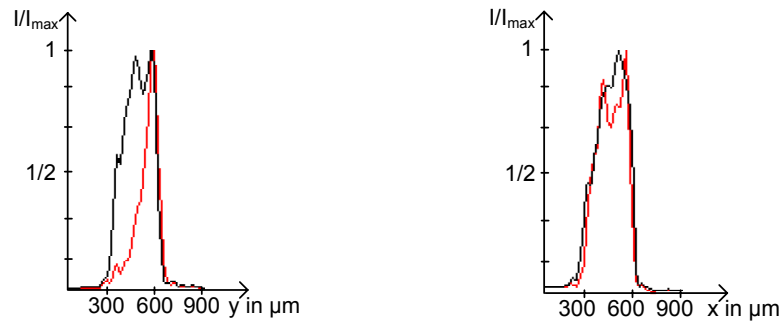


Abbildung 5.25: Intensitätsprofile auf der Austrittsfläche des Kristalls vor (schwarz) und nach (rot) der Fokussierung in x- und y-Richtung jeweils normiert auf die Maximalintensität

fast keine Fokussierung messbar. Maximal trat eine Verringerung des Strahldurchmessers um $90\text{ }\mu\text{m}$, also um 64 % innerhalb von 4 Minuten auf.

6 Untersuchungen in anderen Kristallen

6.1 BaTiO₃

Für die Versuche stand noch ein zweiter Kristall (Nr. 11) mit 45° Schnitt zu Verfügung (siehe Tabelle 3.3, Seite 20). Dieser Kristall ist etwas kleiner als Kristall 20 (siehe Tabelle 3.4, Seite 21), und hatte sowohl an der Oberfläche als auch im Inneren mehr Fehlstellen bzw. Verunreinigungen, die das Strahlprofil teilweise erheblich störten. Dennoch läßt sich eine Änderung des Strahldurchmessers feststellen (siehe Abbildung 6.1). Der Kristall zeigt ein Durchschwin-

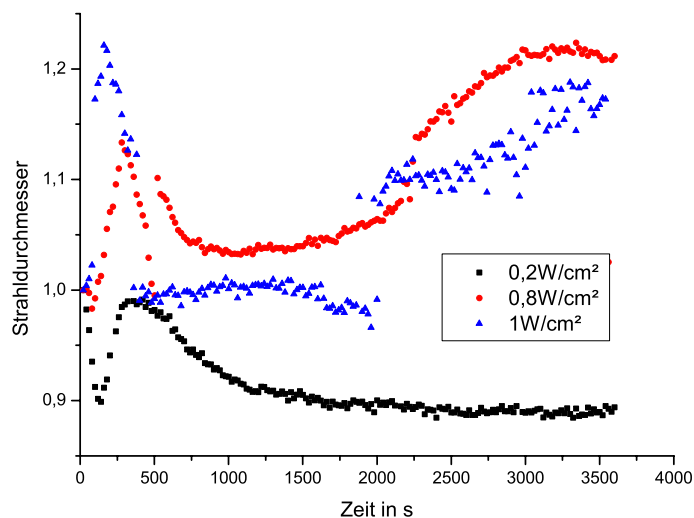


Abbildung 6.1: Abhängigkeit des zeitlichen Verlaufs des Strahldurchmessers von der eingestrahnten Laserintensität bei Kristall 11

gen des Strahldurchmessers, das bei Kristall 20 nicht beobachtet werden konnte. Entweder ist dieser Vorgang bei Kristall 20 so schnell, dass er nicht aufgezeichnet werden konnte, oder er ist eine spezifische Eigenschaft von Kristall 11. Bei keinem der anderen Kristalle konnte ein solches Verhalten beobachtet werden.

Offensichtlich liegt die Laserleistung, die die größte Einschnürung erzeugt, bei einem anderen Wert als bei Kristall 20. Der für Kristall 20 ermittelte Parametersatz kann also nicht ohne weiteres auf alle nominell undotierten Bariumtitanatkristalle übertragen werden. Das qualitative Verhalten jedoch ist bei beiden Kristallen das gleiche.

Von den anderen Bariumtitanatkristallen, die 0° Orientierung besitzen, verursachten ebenfalls manche eine Fokussierung (siehe Tabelle 3.4, Seite 21). Diese ist jedoch generell schwächer als bei den beiden Kristallen mit 45° Orientierung und findet stets nur entweder in Richtung der c-Achse oder senkrecht dazu statt. Es läßt sich also feststellen, dass die Kristalle mit 45° Schnitt besser für die Selbstfokussierung geeignet sind als Kristalle mit 0° Schnitt.

6.2 SBN

Ein anderer photorefraktiver Kristall der gleichen Raumgruppe ist SBN. An diesem Kristall wurden umfangreiche Untersuchungen zur Selbstfokussierung und Solitonenbildung mit Hilfe eines externen Feldes durchgeführt [43, 44]. Eine Änderung des Strahldurchmessers konnte durch Ausnutzung des thermischen Fokussierungseffektes ebenfalls erzielt werden [5]. Die dabei verwendeten Intensitäten lagen im Bereich von $100 \frac{W}{cm^2}$, also um ein vielfaches höher als die in Kapitel 5, Seite 25 verwendeten. Es wurde untersucht, ob unter ähnlichen Bedingun-

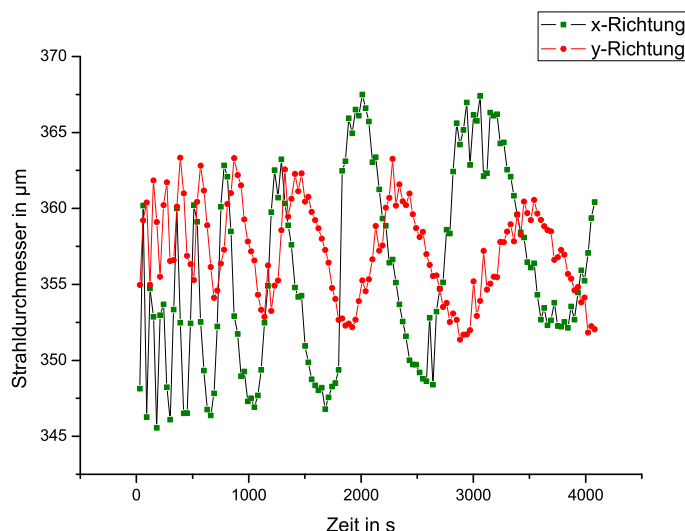


Abbildung 6.2: Änderung des Strahldurchmessers bei SBN unter den optimalen Bedingungen für Kristall 20

gen wie den bei Bariumtitanat verwendeten, ebenfalls eine Änderung des Strahldurchmessers beobachtet werden kann. Der Fokusbereich lag bei $13,4 \mu m$ und die Laserintensität bei $0,23 \frac{W}{cm^2}$. Es wurde keine Hintergrundbeleuchtung angeschaltet, und der Fokus lag auf der Kristallfrontfläche. Das Laserlicht war außerordentlich polarisiert und der Kristall besaß einen 0° Schnitt.

Abgesehen von einem nicht stabilisierbaren Schwingen des Strahldurchmessers (siehe Abbildung 6.2), das jedoch im Bereich des Messfehlers oder nur wenig darüber liegt konnte keine Änderung des Durchmessers festgestellt werden. Nutzte man eine sehr starke Hintergrundbeleuchtung und einen etwas größeren Fokusbereich von $28 \mu m$, konnte jedoch eine Fokussierung bzw. Defokussierung auch bei diesem Kristall erzielt werden (siehe Abbildung 6.3).

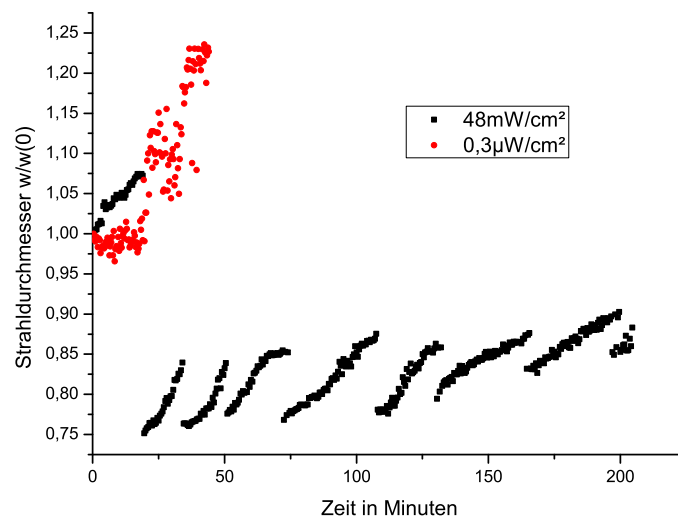


Abbildung 6.3: Änderung des Strahldurchmessers bei SBN in Abhängigkeit von der Zeit für unterschiedliche Laserintensitäten bei einem Fokussdurchmesser von $28\mu\text{m}$ und starker Hintergrundbeleuchtung

7 Z-Scan Experiment

Dieses Verfahren kann zur Bestimmung von optischen Nichtlinearitäten und auch der Stärke der induzierten Absorption verwendet werden. Für eine rein refraktive Nichtlinearität ist die Intensität, nach dem Durchgang durch das Medium, eine Funktion der Position des Mediums relativ zur Fokustaille des Laserstrahls (siehe Kapitel 5.1.1, Seite 25). Anschaulich wirkt das nichtlineare Medium bei einer positiven Brechungsindexänderung wie eine Sammellinse und bei einer negativen Brechungsindexänderung wie eine Streulinse und verändert, je nach Stärke der auftretenden Nichtlinearität, so den Anteil des Strahls, der die Blende, die sich zwischen Kristall und Detektor befindet (siehe Abbildung 7.1) passieren kann.

Im Experiment wurde also der Abstand z zwischen Kristall und fokussierender Linse (siehe Abbildung 7.1) geändert, und die Intensität hinter der Blende B gemessen. Die sich ergeben-

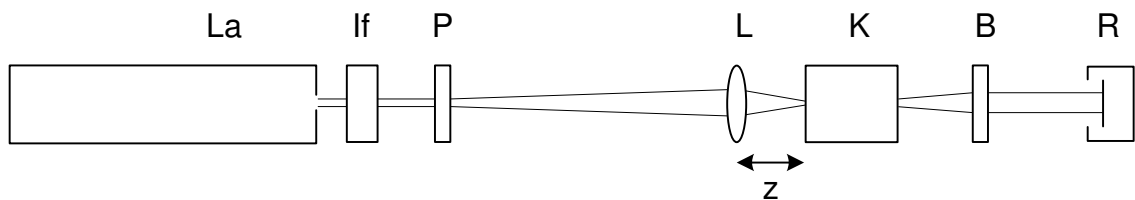


Abbildung 7.1: Anordnung beim Z-scan: La: He-Ne-Laser, If: Intensitätsfilter, P: Glan-Thompson-Polarisator, L: Linse, K: Kristall, B: Blende, R: Leistungsmesser

den, prinzipiellen Signalverläufe für eine positive und eine negative Brechzahländerung sind in Abbildung 7.2 dargestellt. In einem im Vergleich zur Rayleighlänge dicken Medium und

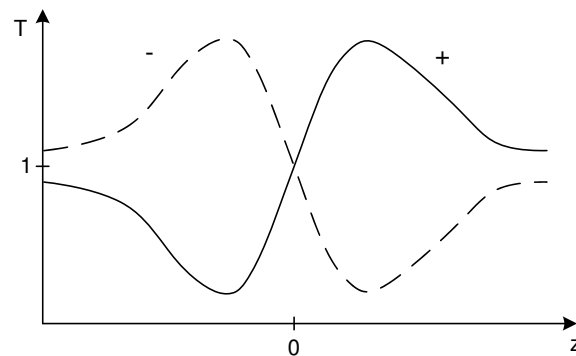


Abbildung 7.2: Die theoretischen Z-scan Kurven für einen negativen nichtlinearen Brechungsindex (gestrichelt) und einen positiven nichtlinearen Brechungsindex. Die Transmission für sehr große bzw. sehr kleine Abstände z zwischen Fokussierungslinse und Kristall wurden auf eins normiert

bei kleinen Intensitäten ist es möglich für die Differenz zwischen dem Maximum und dem

Minimum der Transmission T einen analytischen Ausdruck herzuleiten [45, 46]

$$\Delta T = \frac{1}{4} \beta \ln \left(\frac{9 + \Omega - \Gamma}{1 + \Omega - \Gamma} \frac{1 + \Omega + \Gamma}{9 + \Omega + \Gamma} \right) \quad (7.1)$$

mit

$$\Omega = \eta + \frac{1}{3} \xi^2 \quad (7.2)$$

$$\Gamma = \xi \left[\eta + \frac{1}{12} \xi^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (7.3)$$

$$\eta = -\frac{5}{3} + \left[3 + \frac{1}{9} \left(5 + \frac{1}{2} \xi^2 \right) \right]^{\frac{1}{2}} \quad (7.4)$$

$$\xi = \frac{l}{n_0 z_r} \quad (7.5)$$

$$\beta = 2k n_s I_0 z_r n_0 . \quad (7.6)$$

Dabei ist I_0 die einfallende Laserintensität in der Taille des Strahls, l die Kristalllänge, n_0 der lineare Brechungsindex, k die Wellenzahl im Vakuum, z_r die Rayleighlänge im Vakuum, und n_s ist mit der Brechungsindexänderung Δn verbunden durch

$$\Delta n = n_s n_0 I_0 . \quad (7.7)$$

Der Abstand zwischen dem Maximum und dem Minimum der Transmission auf der z -Achse beträgt etwa $\frac{l}{n_0}$. Mit $n_0 = 2,41$ und $l = 4 \text{ mm}$ ergibt sich eine Entfernung von $1,6 \text{ mm}$. Es ist also noch keine Abspaltung [46] von Maximum und Minimum zu erwarten.

Es ergaben sich die in Abbildung 7.3 und 7.4 dargestellten Messreihen für die in Kapitel 5.4, Seite 37 erläuterte Durchstrahlungs- und Polarisationsrichtung bei Kristall 20. Offensichtlich

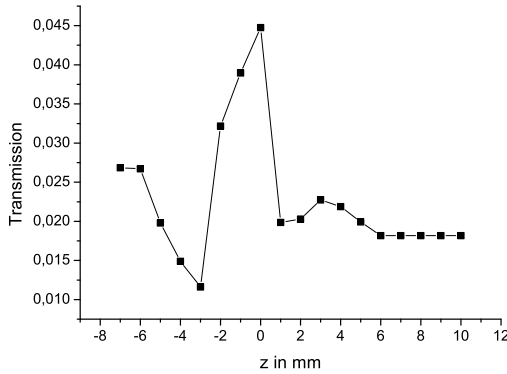


Abbildung 7.3: Z-scan Messung mit
1 mm Blendendurchmesser

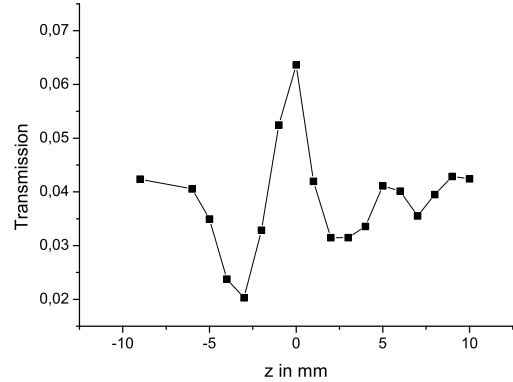


Abbildung 7.4: Z-scan Messungen mit
1,5 mm Blendendurchmesser

besitzt das Material eine positive Nichtlinearität. Für die Messkurve 7.3 ergibt sich mit

$$\Delta T = 0,03 \quad z_r = 506 \mu\text{m} \quad (7.8)$$

eine Brechungsindexänderung von

$$\Delta n = 1 \cdot 10^{-5} . \quad (7.9)$$

Im Fall der Messkurve 7.4 ergibt sich mit

$$\Delta T = 0,043 \quad z_r = 223 \mu m \quad (7.10)$$

eine Brechungsindexänderung von

$$\Delta n = 3,5 \cdot 10^{-5} . \quad (7.11)$$

Der Fehler dieser Brechungsindexänderungen lag bei $\pm 0,5 \cdot 10^{-5}$.

8 Ursachen der Selbstfokussierung

Der nichtlineare Brechungsindex, der die Selbstfokussierung verursacht, wird durch einen oder mehrere der in Kapitel 2.2, Seite 10 vorgestellten Effekte hervorgerufen. Dabei kann der Piezoeffekt (siehe Kapitel 2.2.2, Seite 11) als Hauptverursacher ausgeschlossen werden, da seine Antwortzeit im Bereich von $10^{-9} s$ liegt, der beobachtete Effekt aber Minuten bis hin zu Stunden zur Einstellung eines Gleichgewichtszustands benötigt. Des weiteren liegt die Brechungsindexänderung bei einer Intensität von $2300 \frac{W}{m^2}$, einer Schallgeschwindigkeit von mindestens $340 \frac{m}{s}$, einer Dichte von $6,02 \frac{g}{cm^3}$ und einem $n_0 = 2,36$ nach Formel 2.11, Seite 11 bei maximal $6,5 \cdot 10^{-14}$, ist also vernachlässigbar gering.

Die Brechungsindexänderung durch Besetzungsumverteilung (siehe Kapitel 2.2.4) wird durch Anregung der Ladungsträger über maximal eine Energielücke von $E = \frac{hc}{\lambda} = 1,9 eV$ im Falle des He-Ne-Lasers verursacht. Bei Verwendung des Nd:YAG-Lasers steht jedoch eine Energie von $E = 2,3 eV$ zur Verfügung, es sollten also mehr Ladungsträger angeregt werden. Dieser Effekt zeigt eine Abhängigkeit von $\omega^{-3} = \left(\frac{2\pi c}{\lambda}\right)^{-3}$ (siehe Kapitel 2.2.4, Seite 11 und [47]), was also eine Verringerung der Brechungsindexänderung im Grünen bewirken sollte. Da dies nicht zu beobachten war (siehe Kapitel 5.2.4, Seite 35), kann auch dieser Effekt ausgeschlossen werden. Aus dem selben Grund kann auch der Kerreffekt nicht der Hauptverursacher der Fokussierung sein, da Kerrkoeffizienten wellenlängenabhängig sind [48].

Alle diese Effekte werden dennoch auftreten, und eine Brechungsindexänderung verursachen, jedoch ist diese gering im Vergleich zu den Brechungsindexänderungen durch thermische Fokussierung und photorefraktiven Effekt.

8.1 Thermische Fokussierung

Durch den Laserstrahl, der auf den Kristall fällt, wird das Material erwärmt. Vernachlässigt man die Wärmeleitung, kann diese Erwärmung mittels

$$\Delta T = \frac{\Delta E}{mc_p} \quad (8.1)$$

abgeschätzt werden. Dabei ist c_p die spezifische Wärmekapazität, ΔE die zugeführte Energie, ΔT die Temperaturänderung, und m die Masse des erwärmten Materials. Es wird eine Leistung von $P_e = 0,48 \mu W$ eingestrahlt. Nach der Fresnel-Formel werden davon

$$P_r = P_e \left(\frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2} \right)^2 = 4,8 \mu W \left(\frac{2,41 - 1}{3,41} \right)^2 \approx 0,08 \mu W \quad (8.2)$$

reflektiert, und somit treten nur $P_g = 0,4 \mu W$ in das Material ein. Davon wiederum werden nach dem Lambert-Beer-Gesetz nur

$$P_a = P_g - P_d = P_g - P_g e^{-\alpha d} \approx 0,12 \mu W \quad (8.3)$$

absorbiert. Dabei ist d die durchstrahlte Weglänge.

Es dauert etwa $t = 200 s$ bis nahezu keine Brechungsindexänderung mehr auftritt, und damit

ergibt sich eine maximal zugeführte Energie von

$$\Delta E = Pt \approx 0,024 \mu J . \quad (8.4)$$

Die Masse des erwärmten Materialbereichs kann, unter Verwendung der Dichte $\rho = 6,02 \frac{g}{cm^3}$ und des durchstrahlten Volumens $V \approx 21 \cdot 10^{-3} cm^3$, abgeschätzt werden durch

$$m = \rho V \approx 125 \cdot 10^{-9} kg \quad (8.5)$$

Die spezifische Wärmekapazität von Bariumtitanat beträgt $c_p = 430 \frac{J}{kgK}$ [5, 49], und damit ergibt sich eine Temperaturänderung von

$$\Delta T \leq 0,45 K . \quad (8.6)$$

Dies ist, in Anbetracht der verwendeten Leistung, ein hoher Wert, da keine Wärmeleitungseffekte berücksichtigt wurden. Die tatsächliche Erwärmung dürfte etwas niedriger sein. Da hier jedoch eine Abschätzung der maximal möglichen, durch thermische Fokussierung hervorgerufenen, Brechungsindexänderung vorgenommen wird, kann obiger Wert verwendet werden. Die Erwärmung des Materials bewirkt zum einen, über die Änderung der Dichte, eine direkte Variation des Brechungsindex des Materials (thermo-optischer Beitrag)

$$\Delta n_T = \frac{\partial n}{\partial T} \Delta T , \quad (8.7)$$

zum anderen erzeugt die Erwärmung ein pyroelektrisches Feld. Bei Erhitzung des Kristalls werden durch den pyroelektrischen Effekt die Endflächen der c-Achse positiv bzw. negativ aufgeladen. Dieses pyroelektrische Feld hat die Amplitude

$$E_{pyro} = -\frac{1}{\epsilon\epsilon_0} \frac{\partial P_s}{\partial T} \Delta T , \quad (8.8)$$

wobei P_s die Spontanpolarisation bezeichnet. Jedes elektrische Feld ist aber durch den elektrooptischen Effekt mit einer Änderung des Brechungsindex verbunden gemäß Formel 2.7, Seite 6. Zunächst muss also noch $\langle \Delta \eta \rangle$ berechnet werden.

Die c-Achse liege in z-Richtung, so dass das elektrische Feld geschrieben werden kann als $\vec{E} = (0, 0, E_z)$, und damit ergibt sich für die Änderung des Impermeabilitätstensors nach Formel 2.1, Seite 4

$$\Delta \eta = \begin{pmatrix} r_{13}E_z^2 & 0 & 0 \\ 0 & r_{13}E_z & 0 \\ 0 & 0 & r_{33}E_z \end{pmatrix} . \quad (8.9)$$

Die elektromagnetische Welle breite sich in der xz-Ebene aus, und dabei sei α der Winkel zwischen Ausbreitungsrichtung und c-Achse. Die Verschiebungsfeldvektoren sind

$$\vec{d}_0 = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad \vec{d}_e = \begin{pmatrix} \cos \alpha \\ 0 \\ -\sin \alpha \end{pmatrix} . \quad (8.10)$$

Auch wenn das elektrische Feld auf das Brechungsindexellipsoid einwirkt, bleiben diese Vektoren Eigenvektoren, so dass man einfach

$$\langle \Delta \eta \rangle = \left\langle \vec{d} | \Delta \eta | \vec{d} \right\rangle = \vec{d} \cdot \Delta \eta \cdot \vec{d} \quad (8.11)$$

schreiben kann. Damit ergibt sich für die Änderung des Brechungsindex der ordentlich polarisierten Welle

$$\Delta n_o = -\frac{1}{2}n_o^3(r_{13}E_z) , \quad (8.12)$$

und für die Änderung des Brechungsindex der außerordentlich polarisierten Welle folgt

$$\Delta n_e = -\frac{1}{2}n_e^3(r_{13}E_z\cos^2\alpha + r_{33}E_z\sin^2\alpha) . \quad (8.13)$$

Für die gesamte, durch Erwärmung des Kristalls hervorgerufene, Brechungsindexänderung für außerordentlich polarisiertes Licht folgt somit

$$\Delta n_{te} = \Delta n_T + \Delta n_{pyro} \quad (8.14)$$

$$= \frac{\partial n_e}{\partial T}\Delta T + \frac{1}{2}n_e^3(r_{13}E_{pyro}\cos^2\alpha + r_{33}E_{pyro}\sin^2\alpha) \quad (8.15)$$

Die zur Berechnung der Brechungsindexänderung benötigten Materialkonstanten sind [49]:

$$n_o = 2,41 \quad \frac{\partial n_o}{\partial T} = 0 \text{ K}^{-1} \quad \epsilon_{33} = 160 \quad (8.16)$$

$$n_e = 2,36 \quad \frac{\partial n_e}{\partial T} = 1,4 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1} \quad \frac{\partial P_s}{\partial T} = -3,4 \cdot 10^{-4} \frac{C}{K m} , \quad (8.17)$$

und die Komponenten des Pockelstensors von Bariumtitanat [13] haben die Werte

$$r_{13} = (8 \cdot 10^{-12} \pm 2 \cdot 10^{-12}) \frac{m}{V}$$

$$r_{33} = (105 \cdot 10^{-12} \pm 10 \cdot 10^{-12}) \frac{m}{V} .$$

Nach Kapitel 3.2, Seite 17 beträgt $\alpha = 45^\circ$. Für die, durch thermische Veränderungen hervorgerufene, Brechungsindexänderung für außerordentlich polarisiertes Licht ergibt sich somit

$$\Delta n_{te} = 1 \cdot 10^{-4} \quad (8.18)$$

8.2 Photorefraktiver Effekt

Bedingt durch den photovoltaischen Effekt (siehe Kapitel 2.1.3, Seite 10), existiert ein effektives internes, elektrisches Feld [21, 50, 51], das durch den photorefraktiven Effekt mit einer Brechungsindexänderung verbunden ist. Wenn durch das eingestrahlte Laserlicht freie Ladungsträger erzeugt worden sind, können diese innerhalb des Kristalls wandern, was eine Stromdichte j_{ph} (Formel 2.10, Seite 10) von $j_{ph} = 2 \cdot 10^{-6} \frac{A}{m^2}$ (für $I = 0,5 \frac{W}{cm^2}$) [20] zur Folge hat, die bei einem spezifischen Widerstand des Bariumtitanatkristalls von $\sigma_{ph} = 3 \cdot 10^{-10} \frac{1}{\Omega m}$ [20] mit einem elektrischen Feld verknüpft ist, das man abschätzen kann zu

$$E_{ph} = \frac{j_{ph}}{\sigma} = \frac{I}{\sigma} = 6,7 \frac{kV}{m} . \quad (8.19)$$

Dieses Feld ist parallel zur c-Achse, und damit folgt, wie oben schon erläutert, eine Brechungsindexänderung von

$$\Delta n_{ph} = -\frac{1}{2}n_e^3(r_{13}E_{ph}\cos^2\alpha + r_{33}E_{ph}\sin^2\alpha) \quad (8.20)$$

$$= 2,5 \cdot 10^{-6} \quad (8.21)$$

in der xz-Ebene.

Außerdem tritt Diffusion auf. Diese findet nicht nur parallel zur c-Achse, sondern auch senkrecht dazu statt. Befinden sich die Ladungsträger im Gleichgewicht, gilt die Einsteinrelation $D = \frac{\mu T}{e}$ zwischen Diffusionskonstante D und Ladungsträgerbeweglichkeit μ , und das Diffusionsfeld kann abgeschätzt werden zu [52]

$$E_D \approx \frac{k_B T}{eL} , \quad (8.22)$$

wobei k_B die Boltzmannkonstante ist, e die Elementarladung, L der Strahldurchmesser und T die absolute Temperatur. Die Messungen wurden bei Raumtemperatur, also $T = 296 \text{ K}$ durchgeführt, und mit den obigen Konstanten ergibt sich eine Brechungsindexänderung für außerordentlich polarisiertes Licht durch Diffusion von

$$\Delta n_{Dsenk} = -\frac{1}{2} n_e^3 (r_{13} E_D \cos^2 \alpha + r_{33} E_D \sin^2 \alpha) \quad (8.23)$$

$$= 9,2 \cdot 10^{-12} . \quad (8.24)$$

Offensichtlich ist diese vernachlässigbar gering.

8.3 Simulation

In erster Näherung kann man die Ausbreitung eines Strahls im nichlinaren Medium beschreiben durch

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} - \frac{i}{2k} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \right) A = \frac{ik \Delta n}{n_0} A , \quad (8.25)$$

wobei die Wellenzahl k gegeben ist durch $k = \frac{2\pi n}{\lambda}$ und n_0 der ursprüngliche Brechungsindex des Materials, Δn die Änderung des Brechungsindex und A die langsam veränderliche Amplitude des Gaußstrahls in paraxialer Näherung ist. Um die Brechungsindexänderung zu ermitteln, die die Ursache für die, in Kapitel 5.4, Seite 37 gezeigte, Einschnürung des Strahldurchmessers ist, wurde die Propagation eines Gaußstrahls in einem Bariumtitanatkristall simuliert. Dazu wurde obige Gleichung folgendermaßen diskretisiert

$$-a u_{j-1}^{i+1} + (1 + 2a) u_j^{i+1} - a u_{j+1}^{i+1} = a u_{j-1}^i + (1 - 2a + f) u_j^i + a u_{j+1}^i \quad (8.26)$$

und so mittels des Crank-Nicolson-Verfahrens numerisch gelöst. Dabei ist i der Index der Diskretisierung der Ausbreitungsrichtung z , und j der Index der Diskretisierung der betrachteten Strahlausdehnung senkrecht zu z . Die Konstanten sind

$$a = \frac{i \Delta z}{4k (\Delta x)^2} \quad (8.27)$$

$$f = \frac{ik \Delta n \Delta z}{n_0} , \quad (8.28)$$

wobei Δz die Schrittweite in Ausbreitungsrichtung und Δx die Schrittweite der Diskretisierung des Gaußstrahls ist.

Es wurde angenommen, dass sich im Medium ein Kanal mit erhöhtem Brechungsindex ausbildet, der die Fokussierung verursacht. Der Simulation wurde eine dynamische Kernnichtlinearität von

$$n = n_0 + n_2 I \quad (8.29)$$

zugrunde gelegt, wobei $I = \text{Re}^2(u) + \text{Im}^2(u)$ die Intensität an der jeweiligen Kristallstelle ist. Dieses Vorgehen ist gerechtfertigt, da, wie in Kapitel 8.1, Seite 45 und 8.2, Seite 47 abgeschätzt, die thermische Nichtlinearität, die kerrartig ist (siehe Anhang A.1, Seite 56), eine größere Brechungsindexänderung verursacht als der photorefraktive Effekt. Als Eingangsstrahl wurde eine gaußförmige Intensitätsverteilung mit der Gaußbreite w gewählt

$$u_{\text{ein}} = e^{-\left(\frac{x}{w}\right)^2}. \quad (8.30)$$

Für drei unterschiedliche Gaußbreiten ($w_1 = 2,8$, $w_2 = 6$ und $w_3 = 9,2$), die dem maximalen, minimalen und mittleren, in Kapitel 5 (Seite 25) verwendeten Fokusbereich entsprechen, wurde jeweils die Propagation bei konstantem Brechungsindex simuliert (siehe Abbildung 8.1, 8.2 und 8.3).

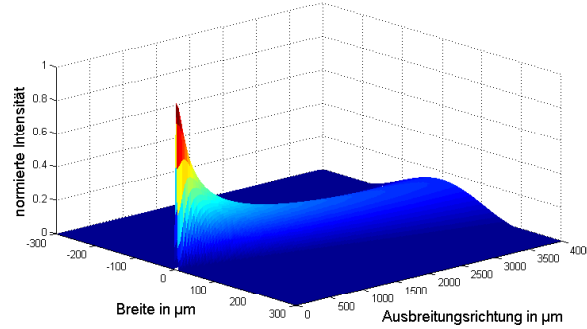


Abbildung 8.1: Freiraumausbreitung bei $n = 2,36$ und $w_1 = 2,8$ über 4 mm

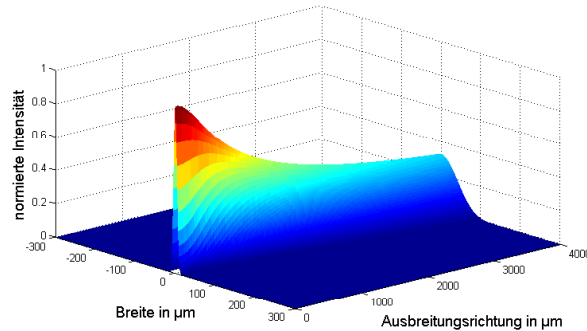


Abbildung 8.2: Freiraumausbreitung bei $n = 2,36$ und $w_2 = 6$ über 4 mm

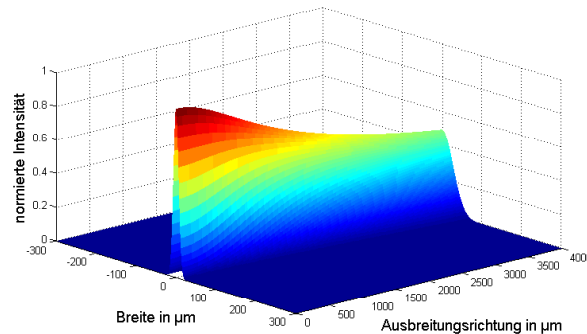


Abbildung 8.3: Freiraumausbreitung bei $n = 2,36$ und $w_3 = 9,2$ über 4 mm

Wie, in Anbetracht der Konstanz des Strahlparameterproduktes, zu erwarten, zeigte der Strahl mit dem kleinsten Eingangsdurchmesser (w_1) die größte Divergenz (siehe Abbildung 8.1). Die Aufweitung des Strahls mit w_3 war wesentlich geringer (siehe Abbildung 8.3). Außerdem wurde die Strahlpropagation bei einer Brechungsindexänderung $\Delta n = 2 \cdot 10^{-5}$, wie sie in Kapitel 7 (Seite 42) für Bariumtitanat ermittelt wurde, simuliert (siehe Abbildung 8.4, 8.5 und 8.6).

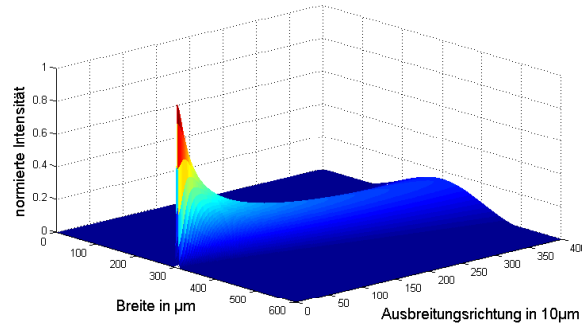


Abbildung 8.4: Ausbreitung bei $\Delta n = 2 \cdot 10^{-5}$ und $w_1 = 2,8$ über 4 mm

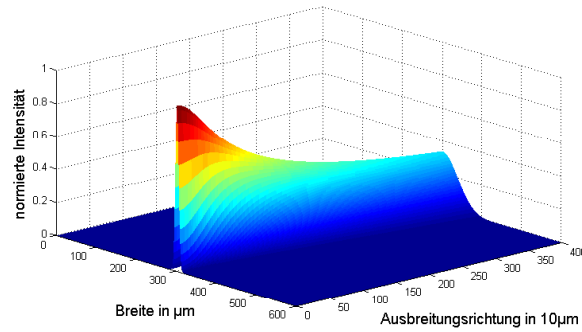


Abbildung 8.5: Ausbreitung bei $\Delta n = 2 \cdot 10^{-5}$ und $w_2 = 6$ über 4 mm

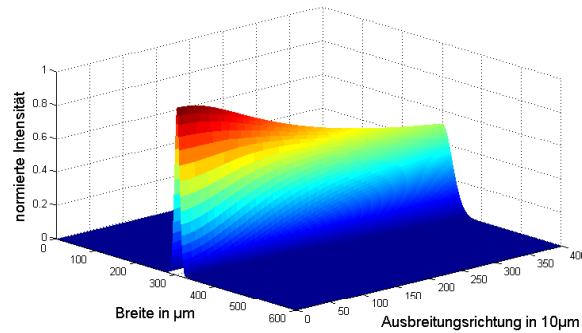


Abbildung 8.6: Ausbreitung bei $\Delta n = 2 \cdot 10^{-5}$ und $w_3 = 9,2$ über 4 mm

Offensichtlich war die Änderung im Vergleich zur Freiraumausbreitung gering, und es trat auch keine Filamentierung oder periodische Änderung des Strahldurchmessers (breathing) auf (siehe Kapitel 5.2.3, Seite 34).

In den Abbildungen 8.7, 8.8 und 8.9 sind solitonenähnliche Propagationen (siehe Kapitel 2.4, Seite 15) für die drei Gaußbreiten w_1, w_2 und w_3 dargestellt. Für ein Soliton ist in diesem Fall also mindestens eine Brechungsindexänderung in der Größenordnung $\Delta n = 10^{-4}$ nötig.

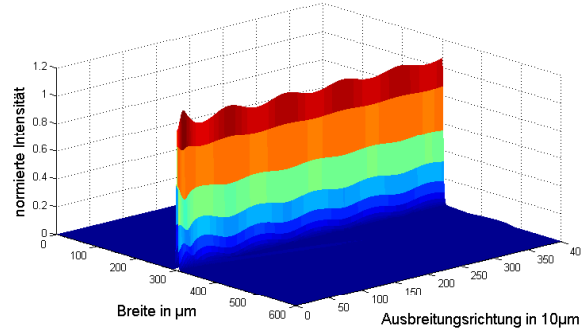


Abbildung 8.7: Solitonenentstehung bei $\Delta n = 1,4 \cdot 10^{-3}$ und $w_1 = 2,8$

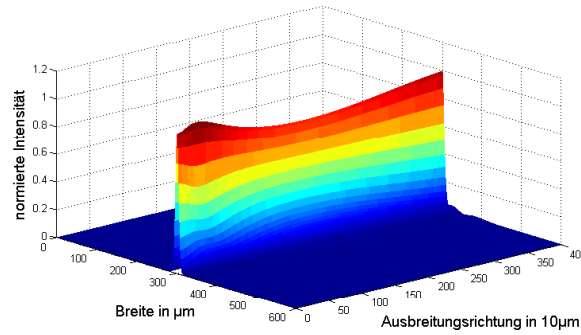


Abbildung 8.8: Solitonenentstehung bei $\Delta n = 2,8 \cdot 10^{-4}$ und $w_2 = 6$

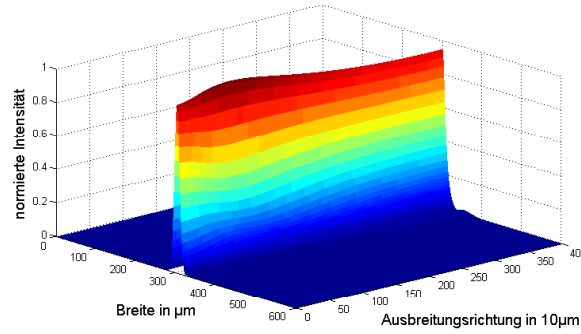


Abbildung 8.9: Solitonenentstehung bei $\Delta n = 1,3 \cdot 10^{-4}$ und $w_3 = 9,2$

Im Folgenden wurde ermittelt, welche Brechungsindexänderung notwendig ist, um eine Verringerung des Strahldurchmessers um 66% zu erzielen (im Vergleich zum Ausgangsstrahldurchmesser ohne Nichtlinearität), was den Werten aus Kapitel 5.4 (Seite 37) entspricht. Das Intensitätsprofil des Eingangsstrahls (blau), des Ausgangsstrahls ohne Nichtlinearität (grün) und das des Ausgangsstrahls bei der entsprechenden Nichtlinearität sind für die jeweiligen Gaußbreiten in den Abbildungen 8.10, 8.11 und 8.12 dargestellt.

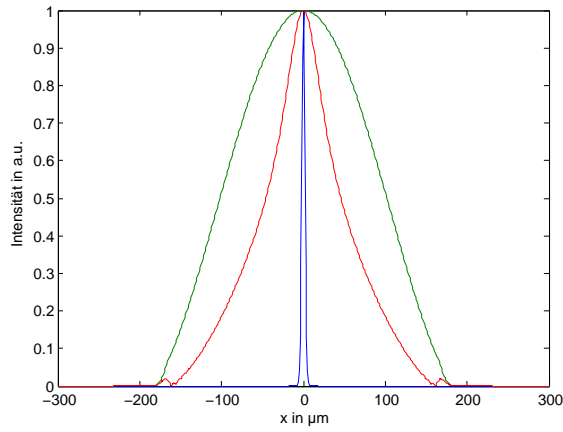


Abbildung 8.10: Vergleich von Eingangsbündel (blau), Ausgangsbündel ohne Nichtlinearität (grün) und Ausgangsbündel bei $\Delta n = 5 \cdot 10^{-4}$ (rot) bei $w_2 = 2,8$

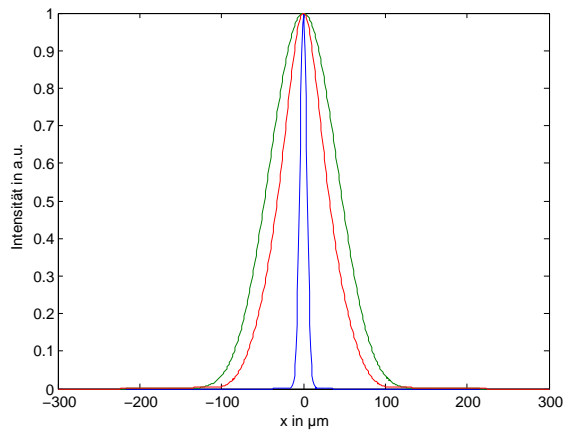


Abbildung 8.11: Vergleich von Eingangsbündel (blau), Ausgangsbündel ohne Nichtlinearität (grün) und Ausgangsbündel bei $\Delta n = 1 \cdot 10^{-4}$ (rot) bei $w_2 = 6$

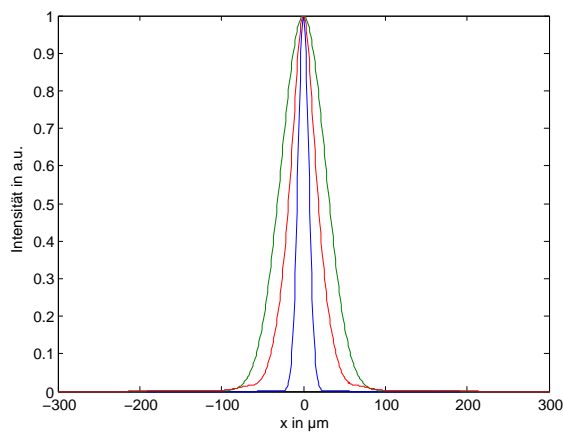


Abbildung 8.12: Vergleich von Eingangsbündel (blau), Ausgangsbündel ohne Nichtlinearität (grün) und Ausgangsbündel bei $\Delta n = 7 \cdot 10^{-5}$ (rot) bei $w_2 = 9,2$

Wie zu erwarten, wird zur Fokussierung des Strahls mit der größten Divergenz (w_1), die größte Brechungsindexänderung benötigt. Bei $w_3 = 9,2$, was einem Fokusbereich von $13\,\mu\text{m}$ entspricht (siehe Kapitel 5.4, Seite 37), genügt schon eine Brechungsindexänderung von $\Delta n = 7 \cdot 10^{-5}$ damit sich der Ausgangsstrahldurchmesser um 66 % verringert (siehe Abbildung 8.12).

8.4 Vergleich der Brechungsindexänderungen

Die durch thermische Fokussierung (Δn_t) und den photorefraktiven Effekt (Δn_p) hervorgerufenen Brechungsindexänderungen, und die durch Z-scan in Kapitel 7 (Seite 42) ermittelte betragen:

$$\begin{aligned}\Delta n_t &= 1 \cdot 10^{-4} \\ \Delta n_p &= 2,5 \cdot 10^{-6} \\ \Delta n_z &= 2 \cdot 10^{-5} .\end{aligned}$$

Wie in Kapitel 8.3 (Seite 48) berechnet, beträgt die sich aus den Simulationen zur Änderung des Strahldurchmessers ergebende, für die Fokussierung notwendig Brechungsindexänderung mindestens

$$\Delta n_s = 7 \cdot 10^{-5} .$$

Die in [20] durch holographische Methoden ermittelte Sättigungsbrechungsindexänderung beträgt

$$\Delta n_l = 1 \cdot 10^{-5} ,$$

und die in [19] angegebene

$$\Delta n_l = 2 \cdot 10^{-5} .$$

Die gemessenen Brechungsindexänderungen (Δn_{l0} und Δn_z) sind also alle etwa gleich groß und, wie die Simulationen zeigen, ausreichend, um die in Kapitel 5.4 (Seite 37) festgestellte Selbstfokussierung zu verursachen.

Die abgeschätzte thermische Brechungsindexänderung ist zwei Größenordnungen höher als die photorefraktive. Jedoch wurde die thermische Nichtlinearität nach oben abgeschätzt (siehe Kapitel 8.1, Seite 45), und dürfte in Wirklichkeit niedriger sein. Es kann also davon ausgegangen werden, dass der photorefraktive Effekt einen nennenswerten Beitrag liefert, wie auch die Messergebnisse zeigen (siehe Kapitel 5.1.5, Seite 30). Bei ordentlich polarisiertem Licht tritt der photorefraktive Effekt stärker hervor, da dort der thermische Effekt wesentlich schwächer ist (siehe Formel 8.16, Seite 47).

Der Selbstfokussierungseffekt in BaTiO_3 kann also auf ein Zusammenwirken von thermischen und photorefraktiven Brechungsindexänderungen zurückgeführt werden.

9 Zusammenfassung

Es konnte nachgewiesen werden, dass in Bariumtitanat und SBN auch ohne ein äußeres elektrisches Feld ein Selbstfokussierungseffekt auftritt. Dazu wurden Untersuchungen in 19 Bariumtitanatkristallen und einem SBN:60 Kristall durchgeführt, wobei zunächst die Dotierung und die Lage der kristallographischen Achse der Kristalle zu ermitteln waren. Die Abhängigkeit des Selbstfokussierungseffektes von der Dotierung der Kristalle, dem Kristallschnitt, der Durchstrahlungs- und Polarisationsrichtung, der Intensität von Laserstrahl und Hintergrundbeleuchtung, der Fokusbildung und -größe, der Beleuchtungszeit und der Wellenlänge wurde untersucht. Wesentliche Ergebnisse dieser Messreihen sind in einer Tabelle auf der folgenden Seite zusammengefasst.

Die optimalen Versuchsparameter, bei denen also die größte Einschnürung des Strahls auftrat, ergaben sich für außerordentlich polarisiertes Licht zu

$$I = 0,23 \frac{W}{cm^2}$$
$$d_{Strahl} = 13,4 \mu m ,$$

wobei d_{Strahl} der Fokusbildungsdurchmesser auf der Kristallfrontfläche ist und I die Laserstrahlintensität.

Vor allem thermische Effekte und der photorefraktive Effekt verursachten die Brechungsindexänderung. Aus Abschätzungen, der durch die verschiedenen Effekte hervorgerufenen Brechungsindexänderungen, Messungen mittels Z-scan und Simulationen ergab sich, dass im Material eine Brechungsindexänderung in der Größenordnung $\Delta n = 10^{-5} \dots 10^{-4}$ erfolgte.

Es dauerte zwischen 4 Minuten und 30 Minuten bis der Strahldurchmesser auf der Kristallaustrittsfläche einen stabilen Wert erreicht hatte. Dementsprechend lang waren auch die Löschenzeiten (über 30 Minuten). Ohne Lichteinfall bleibt die Brechungsindexstruktur bei Raumtemperatur stabil.

Die Zeit für einen Speicherzugriff bei herkömmlichen RAM's liegt bei unter einer Sekunde, kann also nicht zu einer merklichen Einschnürung des Strahls führen. Bedingt durch die sehr hohe Dunkelspeicherzeit des Materials, kommt es jedoch mit der Zeit zu einer Aufsummierung dieser vielen kleinen Brechungsindexänderungen, was zu einer Fokussierung oder Defokussierung und damit zu einem fehlerhaften Beschreiben des Speichermaterials führen kann.

Im Anschluss an diese Arbeit sollte z.B. mittels Vierstrahlinterferenz und umfangreicheren Z-Scan Messungen die Brechungsindexänderung im Material genauer bestimmt werden. Mit Hilfe präziserer numerischer Rechnungen, die sowohl thermische und photorefraktive Änderungen des Materials berücksichtigen als auch Diffusion und vor allem die Ausbreitung des Strahls im Kristall dreidimensional simulieren, könnte die Möglichkeit der Solitonenerzeugung geprüft werden. Damit wäre ein Material gefunden, das es nicht nur zulässt experimentelle Schwierigkeiten durch das sonst übliche äußere elektrische Feld zu vermeiden, sondern auch den Vorteil sehr stabiler, gut reproduzierbarer Materialänderungen besitzt.

| | |
|-------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Dotierung | Nominell undotierte Kristalle lieferten die besten Ergebnisse, Rh und Co als Donatormaterialien sind nicht zu empfehlen. |
| Kristallschnitt | Kristalle mit 45° Schnitt führten zu einem stärkeren Effekt, aber auch in Kristallen mit 0° Schnitt ließ sich ein Effekt beobachten. |
| Durchstrahlungsrichtung | Generell erwies sich die kürzeste Kristalllänge als die, bei deren Durchstrahlung der stärkste Selbstfokussierungseffekt beobachtbar war. |
| Polarisationsrichtung | Sowohl für ordentlich als auch für außerordentlich polarisiertes Licht konnte ein Effekt festgestellt werden, wobei dieser für außerordentlich polarisiertes Licht wesentlich stärker war. |
| Intensität | Es wurden Messungen zwischen $0,016 \text{ W/cm}^2$ und $1,4 \text{ W/cm}^2$ durchgeführt. Bei Intensitäten über $0,3 \text{ W/cm}^2$ (außerordentlich polarisiert) bzw. $1,4 \text{ W/cm}^2$ (ordentlich polarisiert) trat Defokussierung auf. |
| Hintergrundintensität | Bei ordentlich polarisiertem Licht zeigt der Effekt eine Abhängigkeit von der Hintergrundbeleuchtung, bei außerordentlich polarisiertem jedoch nicht. |
| Fokuslage | Der Fokussierungseffekt war am größten, wenn die Fokusfläche auf der Kristallfrontfläche lag. |
| Fokusbereich | Die Abhängigkeit von Fokusbereichen zwischen $4 \mu\text{m}$ und $40 \mu\text{m}$ wurde untersucht. Dabei zeigt sich, dass zwischen $5 \mu\text{m}$ und $8 \mu\text{m}$ Defokussierung beobachtet werden kann und sowohl bei kleineren als auch bei größeren Fokusbereichen Fokussierung. |
| Beleuchtungszeit | Es dauerte zwischen 4 Minuten und 1 Stunde bis sich der Strahldurchmesser stabilisiert hatte. |
| Wellenlänge | Eine Abhängigkeit von der Wellenlänge konnte nicht festgestellt werden. |
| Löschzeit | Es waren Löschzeiten von 30 Minuten notwendig um den Kristall in den Ausgangszustand zu versetzen. |
| Kristall | Auch in SBN konnte ein Selbstfokussierungseffekt ohne äußeres Feld festgestellt werden. |

A Anhang

A.1 Kerrmedien

Kerrmedien zeichnen sich dadurch aus, dass ihr nichtlinearer Brechungsindex eine Funktion der Intensität ist

$$\Delta n = n_2 \langle \vec{E} \vec{E}^* \rangle = n_2 I , \quad (\text{A.1})$$

wobei $\langle \rangle$ für eine zeitliche Mittelung über eine Periode steht und n_2 der nichtlineare Indexkoeffizient ist. Dieser ist mit dem Suszeptibilitätstensor 4. Ordnung (siehe Anhang A.2) verbunden. Für linear polarisiertes Licht gilt [23] z.B.

$$n_2 = \frac{3}{4n_0} \chi_{xxxx}^3 (-\omega, \omega, \omega, -\omega) . \quad (\text{A.2})$$

Unter kerrartigen Medien versteht man solche, in denen die Brechungsindexänderung zwar nicht linear von der Intensität abhängt, aber in denen, z.B. für hinreichend kleine Intensitäten, die Terme höherer Ordnung der Taylorentwicklung von $\Delta n = f(I)$ vernachlässigt werden können, so dass näherungsweise eine lineare Abhängigkeit angenommen werden kann.

Eine andere Art von Brechungsindexänderung hängt nicht direkt von der Intensität ab, sondern von ihrer räumlichen Änderung, und ist somit mit der Suzeptibilität 3.Odnung verknüpft. Die photorefraktiven Medien sind ein Beispiel für diesen Typ. Die Brechungsindexänderung kann hier geschrieben werden als [23]

$$\Delta n(\vec{r}) \propto \frac{\delta I(\vec{r})}{I_0} , \quad (\text{A.3})$$

wobei $\delta I(\vec{r})$ die räumliche Änderung der Intensität: $I(\vec{r}) = I_0 + \delta I(\vec{r})$ ist.

A.2 Herleitung der Wellengleichung

Die Maxwellgleichungen für ein Dielektrikum lauten

$$\nabla \times \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (\text{A.4})$$

$$\nabla \cdot \vec{D} = 0 \quad (\text{A.5})$$

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (\text{A.6})$$

$$\nabla \cdot \vec{H} = 0 . \quad (\text{A.7})$$

Außerdem gilt $\vec{B} = \mu_0 \vec{H}$ und $\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}(\vec{E})$. Die dielektrische Polarisisation ist durch

$$\vec{P}(\vec{E}) = \epsilon_0 \left(\chi^1 \vec{E} + \chi^2 \vec{E} \vec{E} + \chi^3 \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots \right) = \epsilon_0 \underbrace{(\epsilon - 1)}_{=\chi^1} \vec{E} + \vec{P}_{NL} \quad (\text{A.8})$$

$$\vec{D}(\vec{E}) = \epsilon_0 \epsilon \vec{E} + \vec{P}_{NL} \quad (\text{A.9})$$

gegeben, wobei χ^2 die quadratische Nichtlinearität (d.h. ein Tensor 3. Ordnung) ist, und die weiteren die Suszeptibilitätstensoren höherer Ordnung. Mit der quadratischen Nichtlinearität können z.B. das Drei-Wellen-Mischen, die Summen- und Differenzfrequenzerzeugung, die Erzeugung der 2. Harmonischen, der photorefraktive Effekt und die parametrische Verstärkung erklärt werden. Aus dem Tensor 4. Ordnung kann der Kerreffekt, das Vier-Wellen-Mischen, die stimulierten Streuprozesse und die Summen- und Differenzfrequenzerzeugung (höhere Ordnung) abgeleitet werden.

Um nun die nichtlineare Wellengleichung abzuleiten wird vorausgesetzt, dass das Medium keine Dispersion zeigt. Setzt man Gleichung A.9 in A.4 und A.5 ein, bildet die Rotation von A.6 und setzt dann A.4 hierin ein, ergibt sich

$$-\nabla \times \nabla \times \vec{E} = \mu_0 \frac{\partial}{\partial t} \left(\epsilon_0 \epsilon \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \frac{\partial \vec{P}_{NL}}{\partial t} \right).$$

Verwendet man nun die Beziehung $\nabla \times \nabla \times \vec{E} = \nabla (\nabla \cdot \vec{E}) - \Delta \vec{E}$, und aus den Maxwellgleichungen für das Innere eines homogenen Mediums $\nabla \cdot \vec{E} = 0$ so folgt

$$\Delta \vec{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{c \epsilon_0} \frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}}{\partial t^2}. \quad (\text{A.10})$$

Dies ist die nichtlineare Wellengleichung. Setzt man hier $\vec{P}_{NL} = 0$ ein, so erhält man die lineare Wellengleichung.

A.3 Ableitung der Fokusbereich bei Selbstfokussierung in Kerrmedien

Mit Hilfe der nichtlinearen Wellengleichung (siehe Gleichung A.10 und Kapitel A.1) für Kerrmedien

$$\Delta \vec{E} - \frac{\epsilon}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} - \frac{n_1 n_2}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} |\vec{E}|^2 \vec{E} = 0 \quad (\text{A.11})$$

kann man die Distanz zwischen Kristallfrontfläche und Fokus abschätzen. Sei der Strahl in x-Richtung polarisiert, und propagiere in z-Richtung, dann kann man die eingestrahle elektromagnetische Welle durch

$$\vec{E} = \left(E(\vec{r}) e^{i(kz - \omega t)} + c.c. \right) \hat{e}_x \quad (\text{A.12})$$

beschreiben. Die Wellenzahl k ist dabei $k = \frac{n\omega}{c}$. Unter der Annahme, dass sich E im Vergleich zu $e^{i(kz - \omega t)}$ nur langsam ändert und man deshalb die zweite Ableitung der Amplitude vernachlässigen kann, ergibt sich mit A.11

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) E - 2ik \frac{\partial E}{\partial z} + \frac{n_2 k^2}{n_1} |E|^2 E = 0. \quad (\text{A.13})$$

Allgemeine Lösungen dieser Gleichung können nur numerisch gefunden werden. Man kann jedoch das Verhalten des Strahls kurz nach dem Eintreten in das nichtlineare Medium durch geeignete Taylorentwicklungen untersuchen. Mit Hilfe der Formel A.13 kann man zu diesem

Zweck zunächst Gleichungen für die erste und zweite Ableitung der eingestrahlen Intensität finden

$$\begin{aligned}\frac{\partial |E|^2}{\partial z} &= E \frac{\partial E^*}{\partial z} + E^* \frac{\partial E}{\partial z} = \frac{i}{2k} (E \nabla_t^2 E^* - E^* \nabla_t^2 E) \\ \frac{\partial^2 |E|^2}{\partial z^2} &= \frac{1}{4k^2} ((\nabla_t^2 E) (\nabla_t^2 E^*) - E \nabla_t^2 (\nabla_t^2 E^*)) \\ &\quad + \frac{n_2}{4n_1} E \left(|E|^2 \nabla_t^2 E^* - \nabla_t^2 (|E|^2 E^*) \right) + c.c.\end{aligned}$$

mit

$$\nabla_t = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} .$$

Das Feld kann beim Eintritt in das Medium mit Hilfe von

$$E(x, y, 0) = E_0 e^{\left(-\frac{w(z)}{w(0)}\right)^2 (1-i\theta)}$$

beschrieben werden. Hierbei ist θ der Fokussierungsparameter $\theta = \frac{2z_{min}}{kw_0^2}$ und $w(z)$ der Abstand zum Intensitätsmaximum, bei dem die Intensität auf $\frac{1}{e}$ abgefallen ist. Im Folgenden sei $d^2 := w(0)^2$

Entwickelt man nun die Intensität des Lichtstrahls an der z-Achse bis zum Term zweiter Ordnung, so erhält man

$$|E(x=y=0)|^2 \cong E_0^2 \left(1 + 4\theta \frac{z}{kd^2} + \frac{z^2}{k^2 d^4} \left(-4 + 12\theta + \frac{2n_2 k^2 d^2}{n} E_0^2 \right) + \dots \right) .$$

Die Querschnittsfläche des Strahls ist proportional zum Kehrwert der Intensität. Mit der Entwicklung $(1+x)^{-1} = 1 - x + x^2 + \dots$ erhält man also

$$A(z) \cong A_0 \left(1 - 4\theta \frac{z}{kd^2} + \frac{z^2}{k^2 d^4} \left(4 + 4\theta^2 + \frac{2n_2 k^2 d^2}{n} E_0^2 \right) + \dots \right) .$$

Nimmt man an, dass sich der Lichtstrahl auf einen Punkt fokussiert hat, wenn die Querschnittsfläche A verschwinde, so erhält man für die Fokussierungslänge

$$z_f = \frac{kd^2}{2} \frac{1}{\theta + \sqrt{\frac{2\pi^2 n n_2 d^2}{\lambda^2} E_0^2 - 1}} . \quad (\text{A.14})$$

A.4 Herleitung der Differentialgleichung für photovoltaische Solitonen

Die Bilanzgleichung der Ladungsträger, Felder und die Poissongleichung in einer Dimension für den stationären Fall lauten:

$$(sI + \beta) (N_d - N) - \gamma_e n N = 0 \quad (\text{A.15})$$

$$q\mu n E + k_B T \mu \frac{dn}{dx} + \kappa s (N_d - N) I = 0 \quad (\text{A.16})$$

$$\frac{dE}{dx} + \frac{q}{\epsilon} (n + N_A - N) = 0 , \quad (\text{A.17})$$

wobei N_d die Donatoranzahldichte ist, und die übrigen Größen die gleichen sind wie in Kapitel 2.2.6, Seite 11. Außerdem ist in der paraxialen Näherung die langsam veränderliche Amplitude gegeben durch

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} - \frac{i}{2k} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \right) A(x, z) = \frac{ik\Delta n}{n_0} A(x, z) \quad (\text{A.18})$$

Es sei n_0 der ursprüngliche Brechungsindex des Materials und k die Wellenzahl $k = \frac{2\pi n_0}{\lambda}$. Mittels des photorefraktiven Effekts ist die Brechungsindexänderung über den effektiven elektrooptischen Koeffizienten r_{eff} mit dem wirksamen E-Feld durch

$$\Delta n = -\frac{1}{2} n_0^3 r_{eff} E \quad (\text{A.19})$$

verknüpft.

Nun kann man das Raumladungsfeld E annähern durch [39]

$$E \approx -E_p \frac{I/I_d}{1 + I/I_d} . \quad (\text{A.20})$$

Dabei ist $E_p = \frac{\kappa \gamma_e N_A}{q\mu}$ die photovoltaische Feldkonstante und $I_d = \frac{\beta}{s}$ die Dunkelintensität. Setzt man nun den üblichen Solitonenansatz $A(x, z) = u(x)e^{i\gamma z} I_d^{1/2}$ und die Gleichungen A.19 und A.20 in Gleichung A.18 ein, erhält man

$$u - \frac{1}{2k\gamma} \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} = \frac{a}{\gamma} \frac{u^3}{1 + u^2} \quad (\text{A.21})$$

mit

$$a = \frac{1}{2} k n_b^2 r_{eff} E_p . \quad (\text{A.22})$$

A.5 Korrekturen bei den Transmissionsmessungen

Das Spektrometer Specord M40 mißt die Transmission einer Probe in Abhängigkeit von der Wellenzahl, durch Intensitätsvergleich mit einem, nicht durch die Probe geschickten, Strahl. Es verwendet kein polarisiertes Licht. Die Ungenauigkeit der Wellenzahl beträgt 3 cm^{-1} bzw. $0,25 \text{ nm}$. Der Fehler des gemessenen Verhältnisses $\frac{I}{I_0}$ liegt bei unter 1%. Mit dem Lambert-Beerschen-Gesetz

$$\alpha = \frac{1}{d} \ln \left(\frac{I}{I_0} \right)$$

kann der Absorptionskoeffizient α berechnet werden. Dabei vernachlässigt man die Reflexion an Vorder- und Rückseite des Kristalls, die bei der Messung in Luft auftritt. Berücksichtigt man die Tatsache, dass der hin und her reflektierte Anteil des Lichtes zusätzlicher Absorption unterworfen ist, so erhält man mit dem Reflexionskoeffizienten $R = \left(\frac{n-1}{n+1} \right)^2$ die Beziehung

$$\frac{I}{I_0} = \frac{(1-R)^2}{1-R^2 e^{-2\alpha d}} e^{-\alpha d} \Rightarrow \alpha = -\frac{1}{d} \ln \left(-g + \sqrt{\frac{1}{R^2} + 4g^2} \right) \quad (\text{A.23})$$

mit

$$g = \frac{I_0}{I} \frac{(1-R)^2}{2R^2} . \quad (\text{A.24})$$

Abbildungsverzeichnis

| | | |
|-----|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| 2.1 | a) Bariumtitanat in der tetragonalen Phase ohne Berücksichtigung der asymmetrischen Anordnung der Ionen kovalente Radien: Ba= 0,198 nm, Ti= 0,132 nm, O= 0,073 nm Gitterkonstanten: a=b= 0,3992 nm, c= 0,4036 nm; Dichte: $\rho= 6,02 \frac{g}{cm^3}$ b) Bariumtitanat in der tetragonalen Phase mit Berücksichtigung der asymmetrischen Anordnung der Ionen c) Projektion auf die ac-Ebene bei 21 °C: d= 0,009 nm, e= 0,005 nm, f= 0,005 nm | 3 |
| 2.2 | Ladungstransport im Bändermodell: Die Pfeile kennzeichnen die Anregung eines Elektrons bzw. die Rekombination eines Lochs. Durch die, im beleuchteten Bereich (gelb) zugeführte Energie, werden Elektronen vom Valenzband VB in die Störstellen C_1^+ angeregt. Die dadurch entstandenen Löcher wandern in die unbeleuchteten Bereiche, und rekombinieren dort mit C_2^0 bzw. C_1^0 Störstellen. | 8 |
| 2.3 | Ladungstransport durch Diffusion: Die, in den beleuchteten Bereichen (gelb) erzeugten, Ladungsträger, wandern in die unbeleuchteten Bereiche (weiß). Durch diese Ladungsträgertrennung wird ein elektrisches Feld erzeugt. Dieses ist durch den elektrooptischen Effekt mit einer Brechungsindexmodulation verbunden. | 9 |
| 2.4 | Ladungstransport durch Drift: Die, in den beleuchteten Bereichen (gelb) erzeugten, Ladungsträger, wandern gerichtet in die unbeleuchteten Bereiche (weiß). Durch diese Ladungsträgertrennung wird ein elektrisches Feld erzeugt, das dem äußeren elektrischen Feld entgegenwirkt. Dieses ist durch den elektrooptischen Effekt mit einer Brechungsindexmodulation verbunden. | 9 |
| 2.5 | a) Fällt eine <i>symmetrische Lichtverteilung</i> auf einen photorefraktiven Kristall, b) entsteht eine <i>asymmetrische Ladungsträgerverteilung</i> . c) Diese ist über das Gaußsche Gesetz mit einem <i>Raumladungsfeld</i> verbunden, d) das mittels des Pockelseffekts eine <i>symmetrische Brechungsindexverteilung</i> erzeugt. | 12 |
| 2.6 | Phasenfronten bei der Selbstfokussierung einer Intensitätsverteilung in einem Medium mit positiver Nichtlinearität | 13 |
| 2.7 | a) Beugungswinkel θ_B b) Winkel der Totalreflexion θ | 14 |
| 3.1 | Die charakteristischen Transmissionskurvenverläufe für einen rhodium-, einen cobalt- und einen undotierten Kristall in Abhängigkeit von der Wellenlänge | 16 |
| 3.2 | Absorptionskoeffizienten der Kristalle 11 und 20 in Abhängigkeit von der Wellenlänge | 18 |
| 3.3 | Die Versuchsanordnung zur Ermittlung der optischen Achse mittels des pyroelektrischen Effekts: Mittels eines Föns wird der Kristall erwärmt. Die dadurch entstehende Aufladung der Flächen senkrecht zur c-Achse wird mit einem Voltmeter gemessen | 18 |

| | | |
|------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| 3.4 | Ermittlung der c-Achse durch Röntgenstrahlung: Der Kristall wurde mit dem breitbandigen Spektrum einer Röntgenquelle in einer konstanten Richtung durchstrahlt. | 19 |
| 3.5 | Lage der optischen Achse von Kristall 20 im Vergleich zur Flächendiagonale . | 19 |
| 3.6 | Der 0° Schnitt und 45° Schnitt mit den Millerindizes der Netzebenen und Kristallachsen | 20 |
| 4.1 | Versuchsaufbau für die Kapitel 5.1 und 5.3: La ist ein He-Ne-Laser, If ein Intensitätsfilter, P ein Glan-Thompson-Polarisator, Ob ein Mikroobjektiv, K der verwendete Kristall, L1 und L2 Linsen und R die CCD-Matrix. | 23 |
| 4.2 | Versuchsaufbau für die Kapitel 5.2, 5.4 und 6: La ist entweder ein He-Ne-Laser oder ein Nd:YAG-Laser, If ein Intensitätsfilter, P ein Glan-Thompson-Polarisator, L1, L2 und L3 sind Linsen, B eine Blende, K der verwendete Kristall, L4 und L5 Linsen und R die CCD-Matrix | 24 |
| 5.1 | Selbstfokussierung des Strahls bei $\frac{1}{2}I_{max}$ | 25 |
| 5.2 | Selbstfokussierung des Strahls bei $\frac{1}{e^2}I_{max}$ | 25 |
| 5.3 | Intensitätsprofile an der Austrittsfläche des Bariumtitanatkristalls vor (rot) und nach (schwarz) der Fokussierung in x- und y-Richtung jeweils normiert auf die Maximalleistung | 26 |
| 5.4 | Zeitlicher Verlauf des Strahldurchmessers wobei der Fokus innerhalb des Kristalls lag | 26 |
| 5.5 | Zeitlicher Verlauf des Strahldurchmessers wobei der Fokus außerhalb des Kristalls lag | 26 |
| 5.6 | Fokuslage in Beziehung zur Eintrittsfläche des Kristalls | 27 |
| 5.7 | Zeitlicher Verlauf des Strahldurchmessers in Abhängigkeit von der Hintergrundbeleuchtung (die Laserintensität war während der Messung konstant) . . | 28 |
| 5.8 | Strahldurchmesser auf der Kristallaustrittsfläche in Abhängigkeit von der Löschzeit | 28 |
| 5.9 | Maximalintensität auf der CCD in Abhängigkeit von der Löschzeit | 29 |
| 5.10 | Auf den Strahldurchmesser zur Zeit $t=0\text{ s}$ normierter Strahldurchmesser in Abhängigkeit von der Einstrahlungszeit im Abstand von 2 Wochen (rote und schwarze Kurve) und bei Durchstrahlung eines anderen Kristallbereichs (grüne Kurve) | 29 |
| 5.11 | Änderung des zeitlichen Verlaufs der Fokussierung mit der Laserleistung . . . | 30 |
| 5.12 | Polarisations- und Durchstrahlungsrichtung | 31 |
| 5.13 | Vergleich des zeitlichen Verhaltens der Selbstfokussierung bei ordentlich (schwarz) und außerordentlich (rot) polarisiertem Licht für $\frac{1}{2}I_{max}$ und $\frac{1}{e^2}I_{max}$ | 31 |
| 5.14 | Zeitlicher Verlauf des Strahldurchmessers in x-Richtung (linke Graph) und y-Richtung (rechte Graph) bei verschiedenen Umgebungshelligkeiten . . | 32 |
| 5.15 | Im stationären Zustand erreichter Strahldurchmesser in Abhängigkeit von der eingestrahlten Intensität | 33 |
| 5.16 | Zeitlicher Verlauf des Strahldurchmesser für unterschiedliche Intensitäten des einfallenden Strahls | 33 |
| 5.17 | Im stationären Zustand erreichter Strahldurchmesser in Abhängigkeit vom Durchmesser des Fokus auf der Kristallfrontfläche | 34 |

| | | |
|------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| 5.18 | Zeitlicher Verlauf des Strahldurchmesser für unterschiedliche Fokusdurchmesser des einfallenden Strahls | 35 |
| 5.19 | Zeitlicher Verlauf des Strahldurchmessers bei einer Wellenlänge von 633 nm und einer Wellenlänge von 532 nm | 35 |
| 5.20 | Mögliche Durchstrahlungsrichtungen bei Kristall 20 | 36 |
| 5.21 | Phasenflächen der ordentlich und außerordentlich polarisierten Welle . . | 36 |
| 5.22 | Doppelbrechung in der Durchstrahlungsrichtung A | 37 |
| 5.23 | Selbstfokussierung des Strahls bei $\frac{1}{2}I_{max}$ | 37 |
| 5.24 | Selbstfokussierung des Strahls bei $\frac{1}{e^2}I_{max}$ | 37 |
| 5.25 | Intensitätsprofile auf der Austrittsfläche des Kristalls vor (schwarz) und nach (rot) der Fokussierung in x- und y-Richtung jeweils normiert auf die Maximalintensität | 38 |
| 6.1 | Abhängigkeit des zeitlichen Verlaufs des Strahldurchmessers von der eingestrahnten Laserintensität bei Kristall 11 | 39 |
| 6.2 | Änderung des Strahldurchmessers bei SBN unter den optimalen Bedingungen für Kristall 20 | 40 |
| 6.3 | Änderung des Strahldurchmessers bei SBN in Abhängigkeit von der Zeit für unterschiedliche Laserintensitäten bei einem Fokusdurchmesser von $28\text{ }\mu\text{m}$ und starker Hintergrundbeleuchtung | 41 |
| 7.1 | Anordnung beim Z-scan: La: He-Ne-Laser, If: Intensitätsfilter, P: Glan-Thompson-Polarisator, L: Linse, K: Kristall, B: Blende, R: Leistungsmesser . . . | 42 |
| 7.2 | Die theoretischen Z-scan Kurven für einen negativen nichtlinearen Brechungsindex (gestrichelt) und einen positiven nichtlinearen Brechungsindex. Die Transmission für sehr große bzw. sehr kleine Abstände z zwischen Fokussierungslinse und Kristall wurden auf eins normiert | 42 |
| 7.3 | Z-scan Messung mit 1 mm Blendendurchmesser | 43 |
| 7.4 | Z-scan Messungen mit $1,5\text{ mm}$ Blendendurchmesser | 43 |
| 8.1 | Freiraumausbreitung bei $n = 2,36$ und $w_1 = 2,8$ über 4 mm | 49 |
| 8.2 | Freiraumausbreitung bei $n = 2,36$ und $w_2 = 6$ über 4 mm | 49 |
| 8.3 | Freiraumausbreitung bei $n = 2,36$ und $w_3 = 9,2$ über 4 mm | 49 |
| 8.4 | Ausbreitung bei $\Delta n = 2 \cdot 10^{-5}$ und $w_1 = 2,8$ über 4 mm | 50 |
| 8.5 | Ausbreitung bei $\Delta n = 2 \cdot 10^{-5}$ und $w_2 = 6$ über 4 mm | 50 |
| 8.6 | Ausbreitung bei $\Delta n = 2 \cdot 10^{-5}$ und $w_3 = 9,2$ über 4 mm | 50 |
| 8.7 | Solitonenentstehung bei $\Delta n = 1,4 \cdot 10^{-3}$ und $w_1 = 2,8$ | 51 |
| 8.8 | Solitonenentstehung bei $\Delta n = 2,8 \cdot 10^{-4}$ und $w_2 = 6$ | 51 |
| 8.9 | Solitonenentstehung bei $\Delta n = 1,3 \cdot 10^{-4}$ und $w_3 = 9,2$ | 51 |
| 8.10 | Vergleich von Eingangsbündel (blau), Ausgangsbündel ohne Nichtlinearität (grün) und Ausgangsbündel bei $\Delta n = 5 \cdot 10^{-4}$ (rot) bei $w_2 = 2,8$ | 52 |
| 8.11 | Vergleich von Eingangsbündel (blau), Ausgangsbündel ohne Nichtlinearität (grün) und Ausgangsbündel bei $\Delta n = 1 \cdot 10^{-4}$ (rot) bei $w_2 = 6$ | 52 |

| | |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| 8.12 Vergleich von Eingangsbündel (blau), Ausgangsbündel ohne Nichtlinearität (grün) und Ausgangsbündel bei $\Delta n = 7 \cdot 10^{-5}$ (rot) bei $w_2 = 9,2$ | 52 |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|

Literaturverzeichnis

- [1] CHOI, K. ; BIEGALSKI, M. ; LI, Y. ; SHARAN, A. ; SCHUBERT, J. ; UECKER, R. ; REICHE, P. ; CHEN, Y. ; PAN, X. ; GOPALAN, V. ; CHEN, L. ; SCHLOM, D. ; EOM, C.: Enhancement of Ferroelectricity in Strained BaTiO₃ Thin Films. In: *Science* 306 (2004), S. 1005
- [2] GILL, D. M. ; CONRAD, C. ; FORD, G. ; WESSELS, B. ; HOA, S.: Thin-film Channel Waveguide Electro-optic Modulator in Epitaxial BaTiO₃. In: *Appl.Phys.Lett.* 71 (1997), S. 1783
- [3] DELRE, E. ; TAMBURRINI, M. ; EGIDI, G.: Bright Photorefractive Spatial Solitons in Tilted BaTiO₃. In: *LEOS '98, 11 annual meeting.* Orlando, Thursday - Friday, 3 - 4 December 1998
- [4] ANDRADE-LUCIO, J. ; ITURBE-CASTILLO, M. ; MARQUEZ-AGUILAR, P. ; RAMOS-GARCIA, R.: Self-focusing in Photorefractive BaTiO₃ Crystal Under External DC Electric Field. In: *Opt.Quant.Elec.* 30 (1998), S. 829
- [5] HOROWITZ, M. ; DAISY, R. ; WERNER, O. ; FISCHER, B.: Large Thermal Nonlinearities and Spatial Self-phase Modulation in Sr_xBa_{1-x}Nb₂O₆ and BaTiO₃ Crystals. In: *Opt.Lett.* 17 (1992), S. 475
- [6] HOROWITZ, Mo. ; FISCHER, B. ; BARAD, Y. ; SILBERBERG, Y.: Photorefractive Effect in a BaTiO₃ Crystal at the 1.5-mm Wavelength Regime by Two-photon Absorption. In: *Opt.Lett.* 21 (1996), S. 1120
- [7] YOUNDEN, K. ; JAMES, S. ; EASON, R. ; CHANDLER, P. ; ZHANG, L. ; TOWNSEND, P.: Photorefractive Planar Waveguides in BaTiO₃ Fabricated by Ion-beam Implantation. In: *Opt.Lett.* 17 (1992), S. 1509
- [8] CHEN, F.: Optically Induced Change of Refractive Indices in LiNbO₃. In: *J.App.Phys.* 40 (1969), S. 3389
- [9] PALFALV, L. ; HEBLING, J. ; ALMASI, G. ; PETER, A. ; POLGAR, K.: Refractive Index Changes in Mg-doped LiNbO₃ Caused by Photorefraction and Thermal Effects. In: *J.Opt.A* 5 (2003), S. 280
- [10] FAZIO, E. ; RENZI, F. ; RINALDI, R. ; BERTOLOTTI, M. ; CHAUVET, M. ; RAMADAN, W. ; PETRIS, A. ; VLAD, V. I.: Screening-photovoltaic Bright Solitons in Lithiumniobate and Associated Single-mode Waveguides. In: *Appl.Phys.Lett.* 85 (2004), S. 2193
- [11] CROSIGNANI, B. ; DELRE, E. ; PORTO, P. D. ; DEGASPERIS, A.: Self-focusing and Self-trapping in Unbiased Centrosymmetric Photorefractive Media. In: *Opt.Lett.* 23 (1998), S. 912

- [12] XU, Y.: *Ferroelectric Materials and Their Applications*. Amsterdam [u.a.] : North-Holland, 1991
- [13] NOLTE, D.: *Photorefractive Effects and Materials*. Boston [u.a.] : Kluwer Acad. Publ., 1995
- [14] YEH, P.: *Introduction to Photorefractive Nonlinear Optics*. New York : Wiley & Sons, 1993
- [15] GÜNTHER, P. ; HUIGNARD, J.: *Photorefractive Materials and Their Applications 1 - Fundamental Phenomena*. Berlin [u.a.] : Springer, 1988
- [16] WECHSLER, B. ; KLEIN, M. ; NELSON, C. ; SCHWARTZ, R.: Spectroscopic and Photorefractive Properties of Infrared-sensitive Rhodium-doped Bariumtitanate. In: *Opt.Lett.* 19 (1994), S. 536
- [17] MOTES, A. ; BROST, G. ; ROTGE, J. ; KIM, J.: Temporal Behavior of the Intensity-dependent Absorption in Photorefractive BaTiO₃. In: *Opt.Lett* 13 (1988), S. 509
- [18] RYTZ, D. ; WECHSLER, B. ; GARRETT, M. ; NELSON, C. ; SCHWARTZ, R.: Photorefractive Properties of BaTiO₃:Co. In: *J.Opt.Soc.Am.B* 7 (1990), S. 2245
- [19] HOLTSMANN, L.: *Der lichtinduzierte Ladungstransport in Bariumtitanat- und Kaliumniobat-Kristallen*, Osnabrück, Diplomarbeit, 1991
- [20] STEVENDAAL, U. V.: *Untersuchungen zum photorefraktiven Effekt in Bariumtitanat-Kristallen*, Osnabrück, Diplomarbeit, 1998
- [21] KÄNZIG, W.: Space Charge Layer Near the Surface of a Ferroelectric. In: *Phys.Rev.* 98 (1955), S. 549
- [22] KOCH, W.: *Volumen-Photospannung in Bariumtitanat*, Karlsruhe, Diplomarbeit, 1975
- [23] SUTHERLAND, R.: *Handbook of Nonlinear Optics*. 2. ed. New York : Dekker, 2003
- [24] PAULIAT, G. ; MATHEY, P. ; ROOSEN, G.: Influence of Piezoelectricity on the Photorefractive Effect. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 8 (1991), S. 1942
- [25] CROSIGNANI, B. ; SALAMO, G.: Photorefractive Solitons. In: *Optics & Photonics News* (2002), February, S. 38
- [26] DENZ, C. ; WEILNAU, C.: Räumliche optische Solitonen - Licht steuert Licht. In: *Physik Journal* 10 (2003), S. 33
- [27] GARRETT, M. ; CHANG, J. ; JENSSEN, H. ; WARDE, C.: High Photorefractive Sensitivity in an n-Type 45°-Cut BaTiO₃ Crystal. In: *Opt.Lett.* 17 (1992), S. 103
- [28] PETROV, M. ; STEPANOV, S. ; KHOMENKO, A.: *Photorefractive Crystals in Coherent Optical Systems*. Berlin [u.a.] : Springer, 1991
- [29] FIBICH, G. ; GAETA, A.: Critical Power for Self-focusing in Bulk Media and in Hollow Waveguides. In: *Opt.Lett* 25 (2000), S. 335
- [30] FIBICH, G. ; ILAN, B.: Self-focusing of Elliptic Beams: an Example of the Failure of the Aberrationless Approximation. In: *J.Opt.Soc.Am.B* 17 (2000), S. 1749

- [31] KELLEY, P.: Self-focusing of Optical Beams. In: *Self-Focusing of Optical Beams* 15 (1965), S. 1005
- [32] CHIAO, R. ; GARMIRE, E. ; TOWNES, C.: Self-trapping of Optical Beams. In: *Phys.Rev.Lett.* 13 (1994), S. 479
- [33] MEINEL, R. ; NEUGEBAUER, G. ; STEUDEL, H.: *Solitonen*. Berlin : Akademie-Verlag, 1991
- [34] SHE, W. ; CHAN, C. ; LEE, W.: Dark and Bright Photovoltaic Spatial Solitons in Photorefractive Crystals with Positive Refractive-index Perturbation. In: *Opt.Lett.* 26 (2001), S. 1093
- [35] LIU, J.: Existence and Stability of Rigid Photovoltaic Solitons in an Open-circuit Amplifying or Absorbing Photovoltaic Medium. In: *Phys.Rev.E* 68 (2003), S. 026607–1
- [36] SEGEV, M. ; VALLEY, G. ; BASHAW, M. ; TAYA, M. ; FEJER, M.: Photovoltaic Spatial Solitons. In: *J.Opt.Soc.Am.B* 14 (1997), S. 1772
- [37] G.COUTON ; MAILLOTTE, H. ; CHAUVET, M.: Self-formation of Multiple Spatial Photovoltaic Solitons. In: *J.Opt.B* 6 (2004), S. 223
- [38] CHEN, Z. ; SEGEV, M. ; WILSON, D. ; MULLER, R. ; MAKER, P.: Self-Trapping of an Optical Vortex by Use of the Bulk Photovoltaic Effect. In: *Phys.Rev.Lett.* 78 (1997), S. 2948
- [39] VALLEY, G. ; SEGEV, M. ; CROSIGNANI, B. ; YARIV, A. ; M. FEJER, M. B.: Dark and Bright Photovoltaic Spatial Solitons. In: *Phys.Rev.A* 50 (1994), S. R4457
- [40] BACHER, G. ; CHIAO, M. ; DUNNING, G. ; KLEIN, M. ; NELSON, C. ; WECHSLER, B.: Ultralong Dark Decay Measurements in BaTiO₃. In: *Opt.Lett.* 21 (1996), S. 18
- [41] MAUFOY, J. ; FRESSENGEAS, N. ; WOLFERSBERGER, D. ; KUGEL, G.: Simulation of the Temporal Behavior of Soliton Propagation in Photorefractive Media. In: *Phys.Rev.E* 59 (1999), S. 6116
- [42] CHAUVET, M.: Temporal Analysis of Open-circuit Dark Photovoltaic Spatial Solitons. In: *J.Opt.Soc.Am.B* 20 (2003), S. 2515
- [43] WESNER, M. ; HERDEN, C. ; PANKRATH, R. ; D. KIP, P. M.: Temporal Development of Photorefractive Solitons up to Telecommunication Wavelengths in Strontiumbarium-niobate Waveguides. In: *Phys.Rev.E* 64 (2001), S. 036613–1
- [44] TRÄGER, D. ; STRINIC, A. ; SCHRÖDER, J. ; DENZ, C. ; BELIC, M. ; PETROVIC, M. ; MATERN, S. ; PURWINS, H.: Interactions in Large Arrays of Solitons in Photorefractive Crystals. In: *J.Opt.A* 5 (2003), S. 518
- [45] HERMANN, DJ. ; MCDUFF, R.: Analysis of Spatial Scanning With Thick Optically Nonlinear Media. In: *J.Opt.Am.B* 10 (1993), S. 2056
- [46] CHAPPLE, P. ; STAROMLYNSKA, J. ; MCDUFF, R.: Z-scan Studies in the Thin- and the Thick-sample Limits. In: *J.Opt.Am.B* 11 (1994), S. 975

- [47] BUTCHER, P. ; COTTER, D.: *The Elements of Nonlinear Optics*. New York : Cambridge Univ. Press, 1990
- [48] CODA, V. ; SWAIN, R. ; MAILLOTTE, H. ; SALAMO, G. ; CHAUVET, M.: Wavelength, Power and Pulse Duration Influence on Spatial Soliton Formation in AlGaAs. In: *Opt.Comm.* 251 (2005), S. 186
- [49] BUSE, K.: Thermal Gratings and Pyroelectrically Produced Charge Redistribution in BaTiO₃ and KNbO₃. In: *J.Opt.Am.B* 10 (1993), S. 1266
- [50] TAYA, M. ; FEJER, M. ; BASHAW, M. ; SEGEV, M. ; VALLEY, G.: Observation of Dark Photovoltaic Spatial Solitons. In: *Phys.Rev.A* 52 (1995), S. 3095
- [51] SHE, W. L. ; LEE, K. K. ; LEE, W. K.: Observation of Two-Dimensional Bright Photovoltaic Spatial Solitons. In: *Phys.Rev.Lett.* 83 (1999), S. 3182
- [52] STURMAN, B. ; FRIDKIN, V.: *The Photovoltaic and Photorefractive Effects in Noncentrosymmetric Materials*. Amsterdam : Gordon and Breach Science Publishers, 1992

Danksagung

Ich danke Prof. Kowarschik für die Möglichkeit meine Diplomarbeit am „Institut für Angewandte Optik“ anzufertigen.

Mein besonderer Dank gilt Dr. Kießling für die geduldige Betreuung und Prof. Tünnermann für seine hilfreichen Hinweise.

Außerdem danke ich Dr. Rockstuhl vom Institut für Festkörpertheorie und -optik für die Unterstützung bei der Programmierung, Dr. Wehrhan vom Institut für Optik und Quantenelektronik für die Röntgenanalyse der Kristalle und Dr. Schmidl vom Institut für Festkörperphysik für das Zurverfügungstellen des Voltmeters.

Der DFG danke ich für die finanzielle Unterstützung meiner Arbeit im Rahmen der Forschergruppe „Nichtlineare raum-zeitliche Dynamik in dissipativen und diskreten optischen Systemen - räumlich lokalisierte Strukturen und Inhomogenitäten“.

Ich erkläre, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

.....

Ort, Abgabedatum

.....

Unterschrift des Verfassers

Seitens des Verfassers bestehen keine Einwände, die vorliegende Diplomarbeit für die öffentliche Nutzung in der Thüringer Universitäts- und Landesbibliothek zur Verfügung zu stellen.

.....

Ort, Abgabedatum

.....

Unterschrift des Verfassers